



Développement de faisceaux d'ions radioactifs pour le projet SPIRAL 2

A. Pichard

► To cite this version:

A. Pichard. Développement de faisceaux d'ions radioactifs pour le projet SPIRAL 2. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Caen, 2010. Français. NNT : . tel-00544206

HAL Id: tel-00544206

<https://theses.hal.science/tel-00544206>

Submitted on 7 Dec 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Université de Caen
Basse-Normandie

GANIL T 10 03



UNIVERSITÉ DE CAEN / BASSE-NORMANDIE
U.F.R. : Sciences

École Doctorale SIMEM :

Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière et des Matériaux

THESE

présentée par

Mr Alexandre PICHARD

et soutenue

le 26 novembre 2010

en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Génie des procédés

Arrêté du 07 août 2006

Titre :

**Développement de faisceaux d'ions
radioactifs pour le projet SPIRAL 2.**

MEMBRES du JURY

Mr Bertram BLANK, Directeur de recherche CNRS, CEN Bordeaux-Gradignan *(Rapporteur)*

Mr Fadi IBRAHIM, Directeur de recherche CNRS, IPN Orsay *(Rapporteur)*

Mr Gilles BAN, Professeur ENSICAEN, LPC Caen

Mr Thierry STORA, Physicien, CERN Genève

Mr Pascal JARDIN, Ingénieur de recherche 2^{ème} classe CNRS, GANIL Caen

Mme Marie Geneviève SAINT LAURENT, Chercheur CEA, GANIL Caen *(Directeur de thèse)*



Université de Caen
Basse-Normandie

GANIL T 10 03



UNIVERSITÉ DE CAEN / BASSE-NORMANDIE
U.F.R. : Sciences

École Doctorale SIMEM :

Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière et des Matériaux

THESE

présentée par

Mr Alexandre PICHARD

et soutenue

le 26 novembre 2010

en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Génie des procédés

Arrêté du 07 août 2006

Titre :

**Développement de faisceaux d'ions
radioactifs pour le projet SPIRAL 2.**

MEMBRES du JURY

Mr Bertram BLANK, Directeur de recherche CNRS, CEN Bordeaux-Gradignan *(Rapporteur)*

Mr Fadi IBRAHIM, Directeur de recherche CNRS, IPN Orsay *(Rapporteur)*

Mr Gilles BAN, Professeur ENSICAEN, LPC Caen

Mr Thierry STORA, Physicien, CERN Genève

Mr Pascal JARDIN, Ingénieur de recherche 2^{ème} classe CNRS, GANIL Caen

Mme Marie Geneviève SAINT LAURENT, Chercheur CEA, GANIL Caen *(Directeur de thèse)*

Remerciements

Voici venue l'heure de boucler mes valises pour aller explorer de nouveaux horizons. Presque quatre ans déjà se sont écoulés depuis mon arrivée au GANIL et il me semble pourtant que c'était hier. J'aimerais, par ces quelques lignes, remercier chaleureusement toutes les personnes ayant contribué à rendre cette aventure formatrice, passionnante et conviviale.

Je remercie la direction du GANIL, Sydney Galès, Marcel Jacquemet, Marek Lewitowicz, Frédéric Chautard et Gilles Sénécal pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire et m'avoir permis d'effectuer ma thèse dans les meilleures conditions. Je remercie aussi la région Basse-Normandie pour sa participation au financement de cette thèse.

Je tiens à témoigner ma reconnaissance aux membres du Jury d'avoir pris sur leur temps pour estimer mon travail. Je remercie donc Thierry Stora pour son regard d'expert des ECS sur mon travail, Gilles Ban pour avoir accepté de présider ce jury, Bertam Blank et Fadi Ibrahim pour avoir assuré l'écriture des rapports et relu minutieusement mon manuscrit. J'ai vraiment apprécié les échanges perspicaces et constructifs que nous avons pu avoir à l'occasion de ma soutenance.

J'exprime toute ma gratitude au "duo de choc" qui m'a accompagné au cours de ces années. Leurs domaines de prédilection respectifs étaient souvent complémentaires ce qui m'a permis d'aborder solidement épaulé, aussi bien, les aspects théoriques qu'expérimentaux de la production de faisceaux radioactifs. Je n'insisterai pas sur leurs compétences professionnelles qui sont largement reconnues mais j'aimerais souligner avant tout leurs qualités humaines. Je n'aurais jamais pu aller aussi loin durant ma thèse sans la très grande disponibilité de Marie-Geneviève Saint-Laurent. Sa ténacité face aux problèmes en suspens et son goût prononcé pour la remise en question m'ont incité à aller chercher les réponses plus loin et à toujours aller de l'avant. Ces années auront aussi confirmées mon penchant pour l'instrumentation physique et c'est Pascal Jardin qui m'en a dévoilé les arcanes. Nous avons travaillé ensemble sur de nombreux nouveaux dispositifs et son constant optimisme m'a appris à toujours rester confiant en la résolution des problèmes rencontrés. Mais nous n'avons pas fait que discuter d'oscilloscopes ou de coupelles de Faraday puisque Pascal possède

également un esprit très ouvert et j'ai énormément apprécié nos nombreux débats bigarrés.

J'aimerais aussi adresser toute mon amitié à tous les collègues rencontrés au cours de cette thèse au GANIL, lors de campagnes d'expériences ou de conférences.

François de Oliveira, Marlène Assié, Jaromir Mrázek, Milan Honusek et Eva Šimečková pour les bons moments partagés à Řež. Laurent Serani, Charles-Edouard Demonchy, Frédérique Pellemoine, Amelie Fournier, Philippe Alfaut avec qui nous avons mené d'agréables campagnes expérimentales au CENBG. Nos collègues Israéliens « d'autres faisceaux » pour les nombreux échanges : Michael Hass, Tsviki Hirsch, Sergey Vaintraub. Mes remerciements aux collègues de l'IPNO pour les mesures de porosité. Une pensée spéciale pour Gérard Lhersonneau pour les bons moments passés à Jyväskylä et pour m'avoir appris énormément sur le calcul d'erreur et toutes les autres choses si souvent utiles dans la vie du physicien.

Un grand merci à tous les collègues GPIstes, GANISOLiens et autres sourciers capables d'un coup de canne PVC magique de dresser les noyaux à un état de charge plus élevé : (dans l'ordre de mon chemin depuis mon bureau) Alain Mery, Pierre Delahaye, Cyrille Eleon, Jean-Charles Thomas, Patrick Leherissier, Natalie Lecesne, Benoit Osmond, Hanna Franberg, Renan Leroy, Jean-Yves Pacquet, Mickaël Dubois, Laurent Maunoury, Olivier Bajeat, Romain Frigot, Christophe Barué, Christophe Canet, Michel Dupuis, Jean-Luc Flambart, Christian Leboucher, Frédéric Lemagnen. C'est un groupe où il fait bon travailler et partager ses idées, merci pour ces échanges constructifs, pour tous vos conseils et suggestions.

Mes sincères remerciements aux collègues du bureau d'étude et de l'atelier mécanique sans qui tous ces dispositifs expérimentaux n'auraient pu voir le jour, aux collègues du groupe électrique pour les interventions d'urgence sur nos alims, aux collègues du groupe vide pour toutes les fuites détectées et éradiquées, aux collègues du groupe informatique pour tous les bugs résolus, aux collègues des services administratifs pour avoir rendu tout ça plus simple.

Le GANIL n'est pas qu'un lieu de travail, c'est aussi un endroit où l'on peut partager ses passions, se faire des potes pour passer de bonnes soirées, voyager au travers des récits des personnes venant des quatre coins du monde. Grâce à vous (ou à cause) je n'ai pas vu passer ces années. Merci à tous mes partenaires de bad pour ces bonnes séances de défoulement (promis tu auras ta revanche Pascal), merci à toute la bande des mini-thésards (et les plus grands aussi) pour tous les bons moments : barbeuks, anniversaires surprises, virées à la playa, sorties cata... Il vous reste encore une ou deux, voire trois années à tirer, bon courage ! Au fond, je vous envie un peu, profitez à fond de ces instants inestimables. Une pensée

spéciale pour mes deux acolytes de bureau, Aurore (sinon je vais prendre un méga savon... mais non Aurore, on rigole, on t'aime en fait !) et D'Jo (ride safe man).

Bien sur, je n'oublie pas les gens extérieurs au petit microcosme du GANIL, mes sœurs, mes parents et mes amis. Je les remercie pour leur soutien, pour leur intérêt constant sur mon travail qui m'a permis de me plier régulièrement au plaisant exercice de la vulgarisation scientifique et pour s'être vu infliger, sans broncher, la relecture de ce manuscrit. Et enfin une pensée particulière à celle en qui j'ai toute confiance pour me lancer et partager une nouvelle page de ma vie.

Préambule

Ce court paragraphe a pour vocation de livrer au lecteur quelques recommandations utiles à la lecture de ce manuscrit.

Le lecteur souhaitant avoir un aperçu rapide du travail effectué peut parcourir l'introduction et la conclusion générale ainsi que les introductions et conclusions de chaque chapitre qui ont été construites afin de pouvoir être lues indépendamment du corps de texte.

Le lecteur ayant besoin d'informations plus précises sur un sujet particulier peut consulter les différents chapitres individuellement. Seul le 4^{ème} chapitre nécessite la lecture préalable des chapitres 2 et 3 puisqu'il exploite des résultats obtenus dans ces chapitres.

La lecture des annexes n'est pas essentielle à la compréhension du corps de texte. Le volume important de ces annexes s'explique par la volonté de constituer un recueil d'informations pouvant aider les collaborateurs ou toutes personnes souhaitant reproduire des expériences similaires.

Enfin, le lecteur pourra trouver en fin du manuscrit, un glossaire et une figure (associée à la partie 4.2.2 du second chapitre) détachables pouvant rendre la lecture plus agréable.

Le manuscrit est téléchargeable sur le serveur TEL (thèse en ligne) : <http://tel.archives-ouvertes.fr/>

Bonne lecture.

Glossaire

Chapitre 1

$\sigma(E)$: fonction d'excitation d'une réaction.
 $\Phi(E, \theta)$: distribution en énergie et en angle d'un flux de neutrons.
 μ : coefficient d'atténuation des neutrons dans la matière.
 T_{prod} : taux de production en cible épaisse.
 I_{γ} : rapport d'embranchement d'un rayonnement γ
 Q : seuil de réaction.
 t_{irr} : durée de l'irradiation de l'échantillon.
 t_{dep} : durée du déplacement.
 t_{acq} : durée de l'acquisition de l'échantillon.
 λ : constante de désintégration radioactive.
 \overline{TM} : facteur d'acceptation de la chaîne d'acquisition dû au temps mort.
 ϵ_{γ} : efficacité du détecteur γ à l'énergie correspondante du rayonnement.
 f : fréquence du générateur d'impulsions.
 N_f : nombre d'atomes dans les feuilles irradiées.
 m_f : masse des feuilles irradiées.
 M : masse molaire.
 N_a : nombre d'Avogadro.
 ρ : masse volumique.
 S : surface émissive.
 ϵ : émissivité
 T : température de la surface
 σ : constante de Stefan-Boltzmann.
 $F_{a \rightarrow b}$: facteur de forme de la zone a vers la zone b.

Chapitre 2

I : potentiel de première ionisation.
 n_i : concentration d'ions dans un plasma.
 n_e : concentration d'électrons dans un plasma.
 n_o : concentration d'atomes (neutres) dans un plasma.
 g_i : poids statistiques de l'ion.
 g_o : poids statistiques de l'atome, (pour les alcalins, $g_o/g_i = 2$).
 Φ : travail de sortie de l'électron de la paroi.
 m_e : masse de l'électron : $5,489 \times 10^{-4}$ uma.
 k_B : constante de Boltzmann : $1,380 \times 10^{-23}$ J.K⁻¹.
 T : température.
 h : constante de Planck : $6,626068 \times 10^{-34}$ m².kg.s⁻¹.
 r : ratio de la densité des ions sur celle des atomes.
 P_+ : probabilité d'ionisation par contact.
 Φ_p : potentiel du plasma créé au centre d'une source à cavité chaude.

N_{TE} : facteur d'amplification d'une source à cavité chaude.
 η : efficacité d'ionisation dans le volume d'une source à cavité chaude.
 χ : nombre moyen de collisions des atomes sur les parois d'une source à cavité chaude.
 ω : probabilité qu'un ion produit soit extrait sans être neutralisé.
 R : résistance électrique.
 ρ : résistivité électrique.
 n_1 : nombre d'atomes dans la cavité.
 n_2 : nombre d'atomes dans le tube ioniseur.
 n_3 : nombre d'atomes dans l'environnement (four diaphragme).
 λ_{ij} : « vitesse » de passage de la zone i vers la zone j.
 λ_p : « vitesse » de perte dans la zone 3.
 λ_i : « vitesse » d'ionisation dans le tube ioniseur.
 λ_o : « vitesse » de neutralisation dans le tube ioniseur.
 λ_{as} : « vitesse » de sortie du tube ioniseur sous forme atomique.
 λ_{is} : « vitesse » de sortie du tube ioniseur sous forme ionique.
 τ_o : terme source de la cavité.
 N_o : nombre d'atomes implantés sur la feuille.
 λ_{rel} : vitesse de relâchement des atomes par la feuille.
 α et β : paramètres partageant le terme source de la cavité et de son environnement de telle sorte que $\alpha + \beta = 1$ et $0 < \beta < \alpha$.
 τ_v : temps de vol entre deux contacts.
 τ_r : temps de résidence sur une paroi.
 l_m : libre parcours moyen.
 m : masse de l'atome.
 τ_c : temps de collage sur une paroi.
 E_D : enthalpie de désorption.

Chapitre 3

n_i : nombre d'ions dans la source.
 N_{a0} : nombre d'atomes injecté dans la source à $t = 0$.
 λ_{ion} : « vitesse » d'ionisation dans la source ECR.
 λ_{eff} : « vitesse » d'effusion hors de la source ECR.
 ϵ_i : efficacité d'ionisation de la source ECR.

Chapitre 4

$R(t)$: fonction de relâchement.
 λ : constante de désintégration radioactive.
 t_{vol} : temps de vol total dans la cible calculé avec RIBO pour l'hélium à 300 K.
 m_{alcalin} : masse de l'alcalin.
 m_{He} : masse de l'hélium.
 T : température de la cible.
 χ : nombre de collisions dans la cible calculé avec RIBO.
 $t_{\text{résidence}}$: le temps de résidence pour un alcalin sur une surface en graphite à la température T .

Table des matières

Introduction	15
--------------	----

Chapitre 1 « Autres faisceaux, autres cibles »

1. Introduction.....	23
2. Production d' ^6He et de ^8Li	24
2.1. Production d' ^6He	24
2.2. Production de ^8Li	24
3. Production de ^{15}C dans une cible d'oxyde.	25
3.1. Introduction.....	25
3.2. Méthodes de production.....	25
3.2.1. Revue des méthodes utilisées.	25
3.2.2. Méthodes envisageables sur SPIRAL 2.....	26
3.2.3. Cible.....	27
3.3. Calculs de production.	27
3.3.1. Calculs MCNPx / HTAPE3X.	28
3.3.2. Calculs à partir des sections efficaces EAF-07 et PACE 4.....	34
3.3.3. Taux de production potentiel sur SPIRAL 1.	37
3.4. Comparaison et conclusions.	39
4. Production d' ^{14}O	41
4.1. Revue des méthodes utilisées.	41
4.2. Méthode choisie pour SPIRAL 2.....	44
4.2.1. Fonction d'excitation.	44
4.2.2. Taux de production dans la cible.	46
4.2.3. Discussion.....	48
4.3. Mesure de section efficace.....	49
4.3.1. Dispositif expérimental.....	49
4.3.2. Calcul de l'expression de la section efficace.....	53
4.3.3. Calcul d'erreur et caractérisation de chacun des termes.....	54
4.3.4. Regroupement de plusieurs mesures.....	60
4.3.5. Résultats.....	60
4.3.6. Discussion.....	71
4.4. Conception et étude thermique.	72
4.4.1. Type de matériaux à utiliser.....	72
4.4.2. Cible avec une feuille inclinée.....	78
4.4.3. Cible avec un empilement de feuilles.....	81
4.4.4. Conclusions de l'étude thermique.....	87

4.5. Bilan de l'étude de la production d' ^{14}O	88
5. Production d' ^{15}O	89
6. Conclusions et perspectives.....	91

Chapitre 2 Développement d'un ECS dédié aux faisceaux d'ions alcalins

1. Introduction.	93
2. Quelques notions sur l'ionisation de surface.....	94
2.1. Principe de fonctionnement d'une SIS.	94
2.1.1. Eléments de théorie.	95
2.1.2. Les sources à cavité chaudes.	95
2.1.3. Les sources à extraction électrostatique.	96
2.1.4. Quelle technologie pour la source de SPIRAL 2 ?.....	99
2.2. Revue des SIS de par le monde.	99
2.2.1. ISOLDE.....	99
2.2.2. IPNO.....	99
2.2.3. PNPI.....	100
2.2.4. JAEA.....	100
2.2.5. ORNL.....	100
2.2.6. TRIUMF.....	100
2.2.7. GANIL.....	101
2.3. Etude sur le choix des matériaux pour une SIS.....	101
3. Etude du dispositif SISTHE.	101
3.1. But du dispositif.	101
3.1.1. Principe général.	102
3.1.2. Méthodes de mesure du flux injecté.....	102
3.1.3. Méthode utilisant un canon à ion.....	103
3.2. Description et caractérisation du dispositif expérimental.....	105
3.2.1. Description du canon à ion.	106
3.2.2. Description du canon à ion couplé à SISTHE.	107
3.2.3. Modes de fonctionnement.	113
3.2.4. Caractérisation de SISTHE.....	114
3.3. Modèle analytique.	118
3.3.1. Présentation du modèle.....	118
3.3.2. Passage aux grandeurs physiques.....	119
3.4. Résultats.	121
3.4.1. Mesure du temps de réponse du tube ioniseur.....	121
3.4.2. Mesure du temps de résidence des alcalins sur le carbone.....	125
3.4.3. Mesure d'efficacité.....	130
3.5. Conclusions des mesures effectuées sur SISTHE.	141
4. Développement d'un premier prototype de la SIS pour le projet SPIRAL 2.....	143
4.1. Conception.....	143

4.1.1.	Tube ioniseur.	144
4.1.2.	Tube de transfert.	146
4.1.3.	Point de connexion pour la source laser.	146
4.1.4.	Isolation thermique.	147
4.1.5.	Canon à ions.	148
4.2.	Test du prototype.	148
4.2.1.	Vide et dégazage.	149
4.2.2.	Calibration thermique.	149
4.2.3.	Résultats complémentaires.	156
4.3.	Conclusions sur la conception de la SIS du projet SPIRAL 2.	157
5.	Conclusion.	158

Chapitre 3 Développement d'un ECS dédié aux faisceaux d'ions gaz nobles

1.	Introduction.	161
2.	Une source ECR pour la production de faisceaux radioactifs.	162
2.1.	Principe de fonctionnement d'une source ECR.	162
2.2.	Motivations pour le développement de la source MONOBOB.	162
2.3.	Description de MONOBOB.	163
2.4.	Bref historique.	165
3.	Caractérisation de l'ECS.	166
3.1.	Principe des mesures d'efficacité.	166
3.2.	Description du dispositif expérimental.	168
3.3.	Mesures d'efficacité.	170
3.4.	Mesures de temps de réponse.	172
3.4.1.	Mesures à 1400 K pour les différents gaz, injection pulses de gaz côté cible.	172
3.4.2.	Mesures à 1400 K pour les différents gaz, injection des pulses de gaz côté source.	174
3.4.3.	Influence de la température de la cible.	175
3.5.	Résultats complémentaires.	177
4.	Conclusion.	177

Chapitre 4 Estimation des intensités des faisceaux pour SPIRAL 2

1.	Introduction.	179
2.	Estimation de l'efficacité d'effusion dans la cible de SPIRAL 2 pour les gaz nobles.	180

3. Vers une meilleure estimation de l'intensité des faisceaux d'alcalins délivrés avec SPIRAL 2.	184
3.1. Simulation des fonctions de relâchement de l'ECS-ECR.	184
3.1.1. Simulation de la réponse de l'ECS-ECR à une impulsion dans la source.	185
3.1.2. Simulation de la réponse de l'ECS-ECR à une impulsion dans la cible.	187
3.1.3. Simulation de la réponse de la cible seule à une impulsion dans la cible.	190
3.2. Calcul de l'efficacité d'effusion pour les isotopes d'alcalins radioactifs.	190
3.3. Calcul de l'efficacité d'ionisation de la SIS pour les alcalins.	193
4. Conclusion.	197

Conclusion et Perspectives 199

Annexe 1.1 Etude de cibles d'oxydes	205
Annexe 1.2 Regroupement de plusieurs mesures	207
Annexe 1.3 Propriétés des graphites testés	209
Annexe 1.4 Etalonnage des pyromètres	213
Annexe 1.5 Validation du code COMSOL	215
Annexe 2.1 Description du tube ioniseur d'une source à extraction électrostatique à l'aide d'un code Monte Carlo	219
Annexe 2.2 Matériaux candidats pour la source à ionisation de surface	237
Annexe 2.3 Simulations RIBO	247
Annexe 2.4 Canon à ion	249
Annexe 2.5 Schéma électrique SISTHE	251
Annexe 2.6 Coefficients d'émissivité utilisés au cours des calibrations	253
Annexe 2.7 Modèle analytique	255
Annexe 3.1 Etude du transport du faisceau issu de la source ECR	261
Annexe 3.2 Mesures d'émittances	265
Annexe 3.3 Résultats complémentaires	267

Bibliographie 269

Introduction

Les enjeux de la production de faisceaux d'ions radioactifs.

L'émergence d'une multitude de nouvelles installations dédiées à la production de faisceaux d'ions radioactifs confirme le fort engouement de la communauté scientifique pour l'étude de ces noyaux dits « exotiques ». Cet intérêt est largement justifié par la remise en question continuelle des modèles théoriques, décrivant les propriétés des noyaux stables, par des découvertes sur celles des noyaux radioactifs.

De nouvelles structures nucléaires ont été mises en évidence : citons l'exemple emblématique du halo de neutrons, observé pour la première fois sur un noyau dit borroméen de ^{11}Li [1]. Le ^{22}C est désormais le noyau borroméen le plus lourd jamais observé [2].

L'expédition pour explorer l'îlot des éléments super lourds lancée il y a une trentaine d'année vient encore récemment de faire parler d'elle avec la découverte d'un nouvel élément de nombre atomique 117 [3].

La *drip line* neutron, représentant la limite d'existence des isotopes vis-à-vis de l'émission neutron, constitue un repère important pour la construction des modèles nucléaires. L'observation expérimentale récente des noyaux de ^{40}Mg et ^{42}Al [4] semble indiquer que la *drip line* neutron se situe à un rapport N/Z plus élevé qu'il est actuellement admis.

La radioactivité « 2 protons » prédite théoriquement [5] il y a désormais 50 ans n'a été observée expérimentalement que récemment au GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) [6,7] et à MSU (Michigan State University) [8].

Les méthodes de production de faisceaux d'ions radioactifs.

Les nombreuses découvertes sur les propriétés des noyaux n'auraient pu être menées sans le développement de faisceaux d'ions radioactifs accélérés à des énergies permettant d'explorer la matière nucléaire. Ils sont produits par différents procédés : les deux les plus couramment utilisés sont la méthode « en vol » et la méthode ISOL (Isotope Separator On Line).

Méthode « en vol »

La fragmentation à haute énergie consiste à envoyer un faisceau d'ions lourds à haute énergie sur une cible mince. Les fragments produits possèdent une énergie proche de celle du projectile qui leur permet de traverser la cible mince et d'être ionisés. Ils sont alors triés « en vol » dans un spectromètre. Les faisceaux ainsi produits présentent une énergie élevée mais une qualité optique dégradée suite aux réactions des particules avec la matière de la cible.

Au cours de cette production « en vol », les noyaux radioactifs ne sont en contact avec aucune surface. Cela permet de s'affranchir de toute sélection chimique parmi les éléments produits et d'accéder à des noyaux présentant une durée de vie très courte. C'est ce mode de production qui sera utilisé dans les nouvelles installations FRIB [9] à MSU, FAIR [10] à GSI et RIBF [11] à RIKEN.

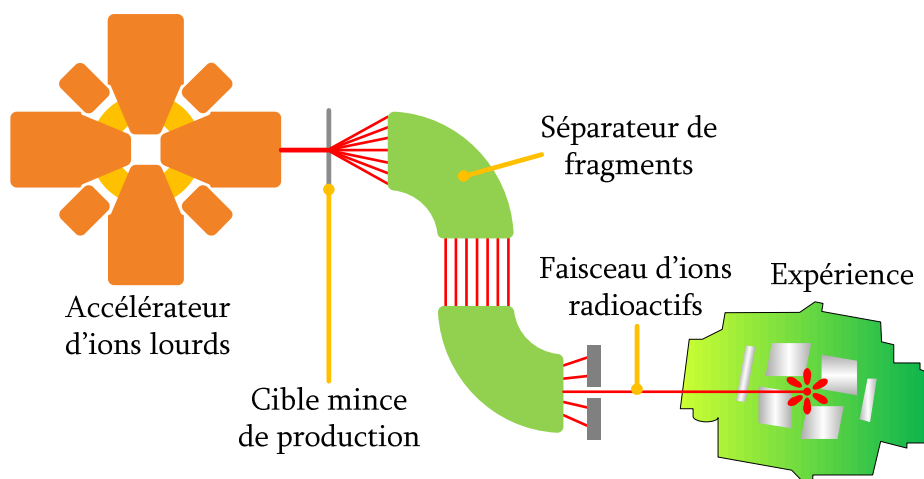


Fig. 1 _ Schéma de principe de la production de faisceaux d'ions radioactifs par fragmentation à haute énergie (ou « méthode en vol »).

Méthode ISOL

La méthode ISOL peut être décomposée en cinq étapes successives : la production des noyaux radioactifs, leur diffusion hors de la cible de production, leur effusion jusqu'à la source d'ion, leur ionisation et leur accélération.

L'étape de production consiste à envoyer un faisceau « primaire » d'ions stables sur une cible de production à une énergie suffisante pour induire des réactions nucléaires conduisant à la production d'atomes radioactifs. La cible de production est suffisamment épaisse pour que les produits de réactions y soient arrêtés. Selon l'énergie du faisceau primaire et le couple cible/faisceau primaire choisis, différents mécanismes réactionnels conduisant à un large panel d'éléments radioactifs peuvent être sélectionnés.

Dans la cible, les atomes radioactifs sont mus par leur énergie thermique. Afin d'accélérer la diffusion, la cible est portée à haute température (~ 2000 °C) par le dépôt de puissance du faisceau primaire dans la cible et/ou un chauffage externe.

Ensuite, les atomes radioactifs effusent dans l'enceinte sous vide reliant la cavité cible à la source d'ions. La géométrie de cette enceinte doit être conçue judicieusement pour faciliter l'effusion vers la source d'ions.

Une fois parvenus dans la source d'ions, les éléments seront ionisés dans l'état de charge requis. Les ions ainsi produits sont extraits de la source pour former un faisceau d'ions qui est ensuite accéléré, trié et envoyé vers les salles d'expérience.

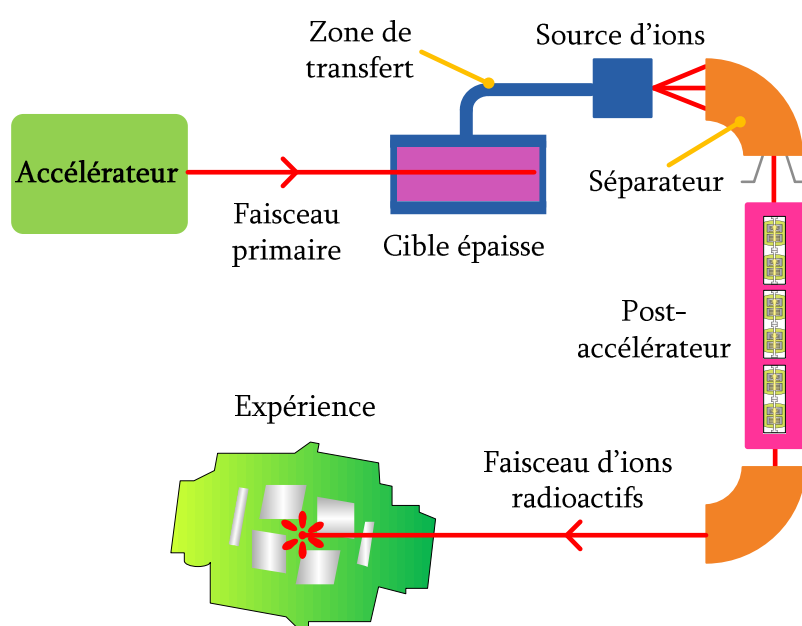


Fig. 2 _ Schéma de principe de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL.

La sélectivité du dispositif (rapport du nombre d'ions d'intérêt sur le nombre de polluants) dépend des choix technologiques faits pour chaque étape du processus. Le choix du couple projectile-cible détermine l'abondance relative de la production entre fragments. La structure microscopique de la cible, sa nature chimique ainsi que celle des fragments d'intérêt conditionnent le relâchement des fragments radioactifs. Les parois de l'enceinte dans laquelle les atomes effusent peuvent favoriser ou au contraire freiner voire annuler la propagation des atomes. Enfin la source d'ionisation, selon le principe choisi, pourra favoriser l'ionisation de certains éléments.

L'augmentation de la température accélère ces processus. Une température élevée permet la production d'ions à partir d'atomes condensables qui seraient perdus autrement, néanmoins, cela se traduit aussi souvent par une altération de la sélectivité chimique.

Au cours de chacune de ces différentes étapes de production les noyaux radioactifs se désintègrent. Par conséquent, lors de conception d'un système de production ISOL, il faut veiller à ce que la durée de chacune de ces étapes soit la plus courte possible devant la durée de vie du noyau radioactif à produire.

Cette méthode de production sera mise en œuvre avec les installations SPES [12] à LNL, HIE [13] à ISOLDE et SPIRAL 2 (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne) [14] au GANIL. Ces installations ouvrent la voie à la future installation européenne de production de faisceau radioactif par la méthode ISOL : EURISOL [15].

SPIRAL 2, une installation de pointe pour la production de faisceaux radioactifs.

L'installation SPIRAL 2 [14,16-18] en cours de construction au GANIL est basée sur un accélérateur linéaire (LINAC) supraconducteur capable de délivrer des faisceaux de haute intensité de protons (33 MeV), de deutons (40 MeV), d' ^3He ainsi qu'une large variété d'ions lourds.

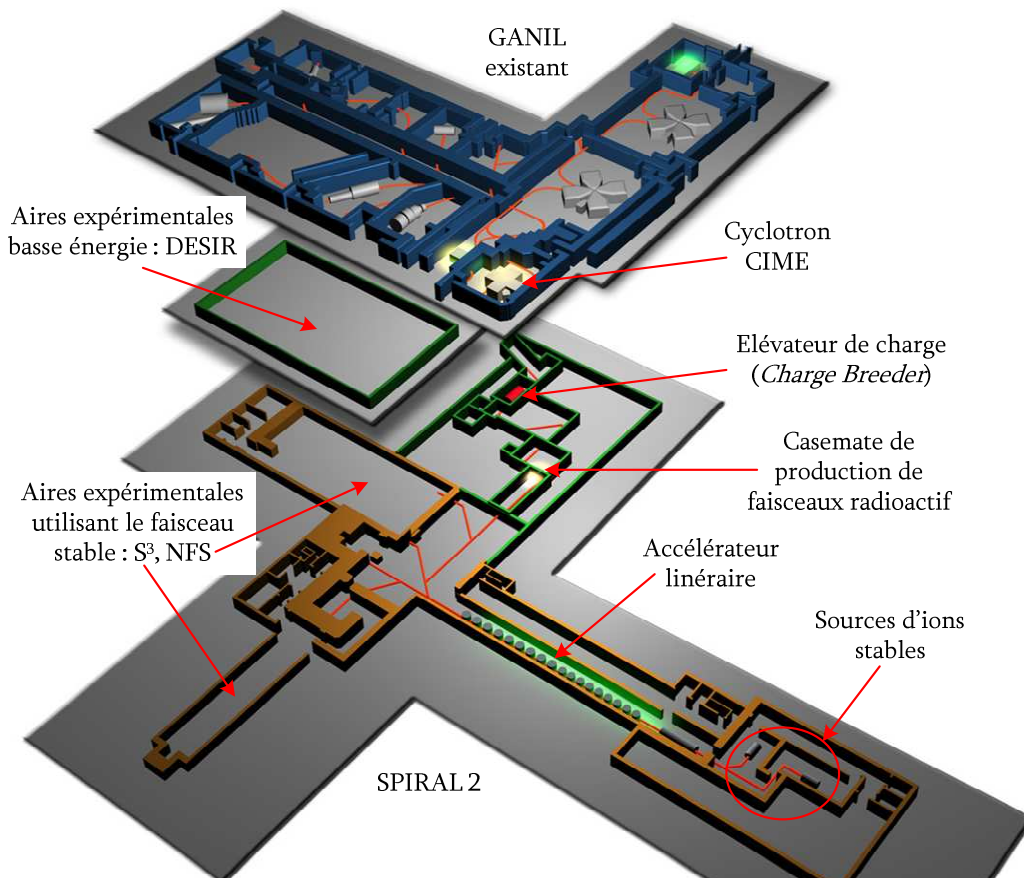


Fig. 3 _ Schéma de principe de l'installation SPIRAL 2.

Le flux de neutrons, issu de la cassure (*break up*) du faisceau de deutons sur une cible tournante de carbone (appelée convertisseur), sera utilisé pour induire des fissions dans une cible de carbure d'uranium. Les noyaux radioactifs ainsi produits seront compris dans une gamme de masse allant de $A=60$ à $A=140$. A ces noyaux riches en neutrons s'ajouteront des éléments proches de la vallée de stabilité par des réactions de transfert ou à l'extrême proches de la *drip line* protons produits par des réactions de fusion-évaporation induites par ions lourds (FP7 tache 7.2). Enfin, l'implantation des faisceaux intenses d'ions légers délivrés par le LINAC sur différentes cibles de production permettra de produire des faisceaux radioactifs légers [19] (voir le premier chapitre de cette thèse).

La combinaison de ces différents mécanismes réactionnels permet de couvrir de larges domaines de la carte des noyaux.

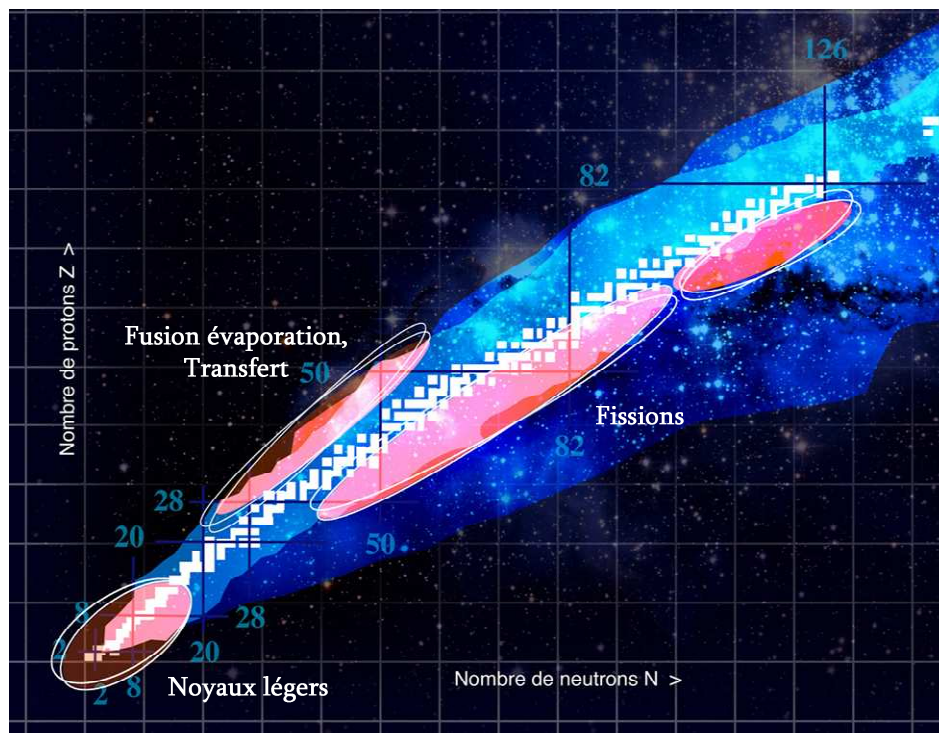


Fig. 4 _ Carte des noyaux produits avec SPIRAL 2.

Les atomes radioactifs ainsi produits seront ionisés par différents types de sources selon la nature de l'atome d'intérêt et les caractéristiques souhaitées du faisceau.

Une source FEBIAD (*Forced Electron Beam Ion Arc Discharge*) permettant d'ioniser quasiment tous les éléments, mais sans sélectivité et avec une efficacité très variable en fonction des éléments est en cours de développement à l'IPN d'Orsay [20].

Une source ECR (*Electron Cyclotron Resonance*), MONOBOB (source à BOBBines pour ions-MONO-chargés) [21] a été développée au GANIL pour ioniser les éléments gazeux dans l'environnement hostile de la casemate de production (voir le troisième chapitre de cette thèse).

Un premier prototype de Source à Ionisation de Surface (SIS) vient d'être achevé au GANIL [22]. Cette source permettra l'ionisation des éléments alcalins et alcalino-terreux (voir le second chapitre de cette thèse).

Enfin, une source d'ionisation laser est en cours de réalisation, elle permettra d'ioniser avec une bonne sélectivité de nombreux éléments [23].

Ces sources délivreront toutes des faisceaux d'ions principalement mono-chargés. Ils peuvent être directement utilisés à basse énergie dans la salle DESIR [24] ou ré-accélérés. Dans ce dernier cas, l'état de charge de ces faisceaux sera élevé par la méthode « $1^+/n^+$ » [25-27]. Ils seront alors ré-accélérés, jusqu'à des énergies dont la valeur maximale dépendra du rapport de la masse A sur la charge Q des ions, avec le cyclotron CIME [28].

Contribution à la production de faisceaux d'ions radioactifs sur SPIRAL 2.

Le travail réalisé au cours de cette thèse porte sur les différentes étapes du processus de production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL avec SPIRAL 2, depuis la production de noyaux radioactifs dans la cible jusqu'aux faisceaux d'ions de basse énergie.

Ainsi, le premier chapitre traite de la possibilité de produire des faisceaux radioactifs légers ($A < 30$). Une liste de cinq faisceaux, ^6He , ^8Li , $^{14,15}\text{O}$ et ^{15}C présentant un fort intérêt physique et dont le développement est considéré prioritaire, a été établie. Cette étude, réalisée au sein d'une collaboration de chercheurs et d'ingénieurs du GANIL [14], de Soreq NRC [29] (Israël) et du Weizmann Institute [30] (Israël), est en partie financée dans le cadre de SPIRAL 2 PP (Preparatory Phase) Task 7.1. La contribution de mon travail de thèse a consisté à étudier la production d' ^{14}O , ^{15}O et ^{15}C en menant une série de simulations, de tests et d'expériences. Ils ont été principalement motivés par le manque de données disponibles dans la littérature. Ces travaux ont fournis les résultats qui, associés à une étude de principe, permettent maintenant d'engager la conception mécanique d'un système de production pour l' $^{14,15}\text{O}$.

Les trois chapitres suivants décrivent ma contribution aux tâches B1.6 et B1.8 du projet SPIRAL 2. Elles consistent à concevoir les deux ensembles, constitués d'un tube de transfert et d'une source d'ionisation, dédiés à la production de faisceaux de gaz nobles et d'alcalins à partir de fragments de fission de l'uranium. Les éléments à produire ont été fixés au début du projet et sont détaillés dans le

document : liste de faisceaux « réduite » pour les études détaillées de la Section Faisceaux Radioactifs [31].

Dans ce cadre, le but de ma thèse était de déterminer et d'évaluer les paramètres qui permettront d'estimer les intensités des faisceaux radioactifs qui seront délivrées par l'installation. Cette estimation doit pouvoir être menée en fonction de différents paramètres du dispositif de production, tels que : la géométrie de la cible et du tube de transfert, l'efficacité des sources d'ionisation et la température de la cible. Cette étude a été menée sur l'ensemble cible-source (ECS) comportant la source ECR existante mais aussi pour le premier prototype de source à ionisation de surface, conçu au cours de cette thèse.

Le second chapitre s'attache aux processus d'effusion et d'ionisation dans le cas de l'ionisation de surface d'éléments alcalins. Suite à une étude globale sur le phénomène d'ionisation de surface, une campagne de mesure a été menée avec SISTHE, une source modulaire de test hors faisceau primaire. Elle a consisté à mesurer le temps de résidence des alcalins sur le graphite, le temps de réponse d'un tube ioniseur en graphite ainsi que l'efficacité d'un tube ioniseur en graphite et en rhénium. Les résultats obtenus ont permis de valider les solutions techniques qui ont été mises en œuvre dans la conception d'un premier prototype de source à ionisation de surface pour SPIRAL 2. Ce prototype a été conçu, fabriqué puis caractérisé d'un point de vue thermique.

Des simulations ont été réalisées pour rendre compte du temps de vol sans collage dans la cible. Elles ont permis de déterminer le nombre de collisions effectuées dans la cible au cours de l'effusion. En utilisant les valeurs du temps de résidence des alcalins sur le graphite, une évaluation de l'impact des processus d'effusion sur la production d'alcalins a pu être réalisée.

Concernant la production de faisceaux de gaz nobles par l'ECS-ECR, trois séries de mesures ont été réalisées : la source ECR a été caractérisée en efficacité d'ionisation et en temps de réponse, puis c'est le temps de réponse de la cible associée à la source qui a été mesuré. Ces tests, décrits dans le troisième chapitre, ont été réalisés pour les gaz nobles stables hélium, néon, argon, krypton et xénon et à différentes températures de la cible. Les résultats obtenus ont permis d'évaluer l'impact des processus d'effusion-ionisation sur la production de faisceaux de gaz nobles (chapitre 4). Ils ont aussi conduit à l'estimation du temps de réponse de la cible seule pour les gaz nobles, c'est-à-dire au temps de vol sans collage dans la cible.

Chapitre 1

« Autres faisceaux, autres cibles »

1. Introduction.

Le but du groupe de travail « autres faisceaux-autres cibles » est d'étudier les possibilités de production de faisceaux radioactifs légers ($A < 30$) pour SPIRAL 2 autrement que par fission. Ce groupe est constitué de chercheurs et d'ingénieurs du GANIL [14], de Soreq NRC [29] (Israël) et du Weizmann Institute [30] (Israël), les recherches menées sont en partie financées dans le cadre de SPIRAL 2 PP (Preparatory Phase) Task 7.1.

Ces faisceaux seront produits par la méthode ISOL (Isotope Separation On Line). Les faisceaux légers et très intenses (quelques mA) de protons (33 MeV), deutons (40 MeV) et hélium, qui seront délivrés par le LINAC de SPIRAL 2, seront utilisés pour produire les isotopes déficients en neutrons. Du côté riche en neutrons, les isotopes seront produits à l'aide de l'important flux de neutrons (énergie moyenne : 14 MeV) produit par l'impact du faisceau de deutons sur une cible tournante en graphite appelée convertisseur (voir la présentation de L. Tecchio lors de la SPIRAL 2 Week [32]).

La première étape a consisté à déterminer quels sont les faisceaux radioactifs présentant le plus d'intérêts, qu'il est possible de délivrer à partir de ces moyens de production. Un important travail de recherche bibliographique sur les fonctions d'excitation et sur les propriétés physico-chimiques des cibles de production a été mené. Lorsqu'elles étaient inconnues, les sections efficaces ont été estimées à l'aide de différents codes de calcul. [33,19]. A partir des résultats préliminaires de ces études et de documents témoignant de l'intérêt pour la physique de certains faisceaux (le livre blanc de SPIRAL 2 [16] et la lettre d'intention pour SPIRAL 2 publiée par M. Hass *et al.* [34]), cinq faisceaux ont été sélectionnés. Ainsi, nous avons consacré nos efforts prioritairement sur le développement de faisceaux de ${}^6\text{He}$, ${}^8\text{Li}$, ${}^{14,15}\text{O}$ et ${}^{15}\text{C}$.

Une série de simulations, de tests et d'expériences ont été menés afin de démontrer la possibilité de produire de tels faisceaux avec SPIRAL 2 et d'estimer les taux de production potentiels. La production des faisceaux d' ^6He et de ^8Li a été prise en charge par les deux groupes de recherche Israéliens en collaboration avec ISOLDE [35] et le GANIL. La production des faisceaux d' ^{14}O , ^{15}O et ^{15}C est présentée plus en détails car faisant partie de ce travail de thèse.

2. Production d' ^6He et de ^8Li .

Comme cela a été dit précédemment, la production des faisceaux d' ^6He et de ^8Li a été prise en charge principalement par les deux groupes de recherche Israéliens. Par conséquent, l'étude effectuée pour développer ces deux faisceaux ne sera abordée que brièvement dans cette partie.

2.1. Production d' ^6He .

Un faisceau d' ^6He ($T_{1/2} = 0,81$ s) est d'ores et déjà produit avec SPIRAL 1, 2×10^8 pps sont extraits de la source d'ions et sont disponibles pour des expériences à basse énergie. Le faisceau peut être post-accélééré par le cyclotron CIME et 3×10^7 pps sont disponibles jusqu'à 7,3 MeV/A et 5×10^6 pps jusqu'à 20 MeV/A.

Avec SPIRAL 2, le faisceau d' ^6He serait produit en bombardant une cible de béryllium avec le flux de neutrons produit par le convertisseur. La section efficace de la réaction $^9\text{Be}(n,\alpha)^6\text{He}$ a déjà été mesurée, des valeurs peuvent être trouvées dans la littérature [36]. Toutefois, la diffusion de l'hélium dans une matrice de BeO n'est pas connue. Une expérience a été menée par T. Stora [37] en collaboration avec les groupes Israéliens [2,3] et le GANIL. Le relâchement de l' ^6He hors d'une cible de BeO a été mesuré en fonction de la température de la cible. Pour des températures supérieures à 1400°C, plus de 80% de l' ^6He produit est relâché. Le taux d' $^6\text{He}^+$ mesuré au plan focal du séparateur et produit avec la source VADIS [38], était supérieur à 5×10^7 ions par μC de proton incident sur le convertisseur. La production d'un tel faisceau semble prometteuse avec SPIRAL 2, l'estimation du taux d' ^6He produit dans une cible de BeO (densité 1 g/cm³) serait de l'ordre de $1,6 \times 10^{11}$ à $2,5 \times 10^{11}$ pps par mA de deutons [39].

2.2. Production de ^8Li .

La même méthode de production pourrait être utilisée avec une cible de bore pour produire un faisceau de ^8Li . La section efficace de la réaction $^{11}\text{B}(n,\alpha)^8\text{Li}$ a, elle aussi, déjà été mesurée [36]. Différents matériaux (B_4C , BN) susceptibles de constituer une cible adéquate pour SPIRAL 2 ont été recherchés (haute température de fusion, microstructure de l'ordre du micromètre). Des tests sont en cours en Israël pour étudier la tenue en température du B_4C et le relâchement du Li par une telle cible [40].

3. Production de ^{15}C dans une cible d'oxyde.

3.1. Introduction.

Comme l'indique le white book de SPIRAL 2 [16], il existe une importante demande pour la production d'un faisceau de ^{15}C au GANIL. Le ^{15}C présente entre autres les propriétés suivantes :

- Son noyau est faiblement lié ($S_n = 1.218 \text{ MeV}$)
- Son unique neutron célibataire se situe dans une orbitale s ($l = 0$) dont l'extension spatiale est maximale, ce qui en ferait un noyau dit à « halo ».

C'est donc un noyau qui est constitué de deux composants faiblement liés et qui constitue un système exotique. Ces propriétés particulières en font un cas intéressant pour l'étude de l'influence de la faible liaison (des neutrons) sur les mécanismes de réactions aux énergies autour de la barrière Coulombienne. Les articles de revues [41,42] donnent un aperçu de cette problématique. L'amélioration des méthodes expérimentales permet désormais d'utiliser des faisceaux de relativement faible intensité (10^5 pps) [43], ce qui rend possible l'utilisation d'un faisceau de ^{15}C généralement produit avec une faible intensité.

Il est envisagé de produire ce faisceau dans une cible d'oxyde à l'aide de l'important flux de neutrons qui sera généré derrière le convertisseur de SPIRAL 2. Cette méthode de production permet de produire de nombreux autres éléments du côté riche en neutrons selon le type d'oxyde choisi pour constituer la cible. Des calculs et simulations permettent d'estimer les taux de productions potentiels de ces noyaux avec SPIRAL 2.

3.2. Méthodes de production.

3.2.1. Revue des méthodes utilisées.

Les faisceaux de carbone radioactifs sont généralement produits par interaction d'un faisceau primaire avec une cible contenant de l'oxygène. Une fois l'isotope de carbone formé, il s'associe avec un atome d'oxygène pour former la molécule volatile CO. Cela permet de transporter le carbone par effusion de la cible à la source, même à température ambiante.

Un faisceau de $^{15}\text{C}^+$ a été produit à l'aide de l'installation TISOL (TRIUMF Isotope Separator On-Line) [44] (Laboratoire national canadien pour la recherche en physique nucléaire et en physique des particules, Vancouver). La spallation des noyaux d'une cible de zéolite ou de MgO par un faisceau de protons de $10 \mu\text{A}$ à 500 MeV a été utilisée. Les taux de production respectivement mesurés en sortie de la source pour ces deux types de cibles sont de $9,1 \times 10^3$ et $2,6 \times 10^4 \text{ pps}$.

A ISOLDE au CERN (Centre Européen pour la Recherche Nucléaire, Genève) la même méthode avec des protons de plus d'1 GeV est utilisée. Différents types de cibles d'oxyde ont été testés : CaO, MgO, CeO_x et TiO₂, les taux de production respectivement obtenus sont de $6,2 \times 10^3$, $7,7 \times 10^2$, $1,1 \times 10^4$ et $9,2 \times 10^3$ pps [35,45]. Ces taux sont mesurés dans le plan focal du séparateur et sont normalisés à une intensité de faisceau primaire de 1 μ A. Le CO formé est ionisé une fois par une source FEBIAD de type MK-6 ou MK-7.

Au GANIL sur le banc de test des ECS (Ensembles Cibles-Sources) de SPIRAL 1 : SIRA (Séparateur d'Ions RADIOactifs), différentes cibles d'oxydes ont été testées [46]. Ces tests ont démontré la possibilité de produire les molécules ^{11,15,16}CO en utilisant un faisceau primaire de ²²Ne (25 MeV/A et seulement 100 nAe) sur des cibles de Al₂O₃, HfO₂, ZrO₂. Des développements restent à réaliser avant de pouvoir produire ces faisceaux avec SPIRAL 1 et de les délivrer aux aires expérimentales.

Le nouveau projet de faisceaux ré-accélérés REA3 est en cours de construction au NSCL (National Superconducting Cyclotron Laboratory at Michigan State University). Il devrait permettre de produire un faisceau de ¹⁵C, à des intensités de 4×10^5 pps [47], post-accélérés à une énergie comprise entre 0,3 et 5 MeV/A. Pour le moment, ces taux sont estimés à un ordre de grandeur près étant donné le manque de recul sur l'opération d'une telle installation.

3.2.2. Méthodes envisageables sur SPIRAL 2.

Les mécanismes réactionnels présentés précédemment ne sont pas envisageables sur SPIRAL 2 car la gamme d'énergie des faisceaux primaires disponibles est trop basse. Les noyaux de ¹⁵C pourraient être produits en envoyant sur une cible d'oxygène, le flux de neutrons attendu derrière le convertisseur de SPIRAL 2. La meilleure réaction serait ¹⁸O(n, α)¹⁵C car elle bénéficie de l'importante énergie de liaison de la particule α . Son seuil de réaction est assez bas : 5,3 MeV. Malheureusement, l'abondance naturelle de l'¹⁸O n'est que de 0,2%. Cette réaction sera donc peu probable par rapport à la réaction avec l'¹⁶O dans une cible contenant de l'oxygène naturel. D'autre part, le coût d'une cible dopée en isotope ¹⁸O est dissuasif. Une petite cible d'oxyde de magnésium enrichie en ¹⁸O a déjà été testée à TRIUMF [48], les résultats obtenus ne justifient pas le coût très élevé d'une telle cible et son utilisation a été abandonnée [49]. La cible contiendra donc de l'oxygène naturel et le principal mécanisme de réaction sera ¹⁶O(n,2p)¹⁵C. Les molécules de ¹⁵CO seront ionisées à l'aide d'une source ECR (*Electron Cyclotron Resonance*) type MONOBOB (source à BOBbines pour ions-MONO-chargés) [21].

3.2.3. Cible.

La production de ^{15}C nécessite donc le développement d'une cible d'oxygène. L'utilisation d'une cible gazeuse présente de nombreux inconvénients ; sa faible densité limite le nombre de noyaux cible et elle requiert la mise en place d'une séparation chimique. Une cible solide d'oxyde réfractaire semble un choix plus approprié. Ce type de cible est couramment utilisé dans les systèmes de production de faisceaux radioactifs [45,50-55].

L'annexe 1.1 compare les performances des cibles d'oxydes réfractaires potentiellement utilisables. Les oxydes de zirconium (ZrO_2) et d'hafnium (HfO_2) constituent des bons candidats pour réaliser la cible de production de ^{15}C . Néanmoins, il est possible d'élargir la palette des isotopes produits en utilisant les réactions sur l'autre élément (que l'oxygène) de la molécule [56]. Le but est la production de faisceaux radioactifs légers ($A < 30$), l'autre élément de la molécule d'oxyde devra être un élément léger. Par exemple, l'utilisation de l'oxyde de béryllium (BeO) permet de produire simultanément l' ^6He par la réaction $^9\text{Be}(n,\alpha)$ [37,57]. Néanmoins, le BeO est un composé particulièrement cancérigène qui doit être manipulé avec de grandes précautions, les filières d'évacuation d'une telle cible après irradiation ne sont pas encore identifiées. L'utilisation de cibles de MgO et d' Al_2O_3 pourrait permettre de produire les isotopes riches en neutrons du Ne, Na et Mg. L'oxyde d'aluminium Al_2O_3 est habituellement utilisé comme isolant électrique à haute température et il est facilement disponible. Il devra toutefois présenter une microstructure qui facilite la diffusion.

3.3. Calculs de production.

Il est important de pouvoir estimer le taux de production de ^{15}C potentiellement disponible sur SPIRAL 2 afin de juger de l'intérêt d'un tel système de production. Les sections efficaces de production du ^{15}C , induites par neutrons, n'ont quasiment pas été mesurées. Aucune donnée n'est disponible pour la réaction $^{16}\text{O}(n,2p)^{15}\text{C}$. La section efficace de la réaction $^{18}\text{O}(n,\alpha)^{15}\text{C}$ est mesurée en dessous de 250 keV [58] et pour une énergie incidente de 14,4 MeV (7,6 mb) [59].

Une série de calculs de taux de production a été menée sur un cas particulier de cible d'oxyde : Al_2O_3 . Dans un premier temps, les calculs sont effectués à l'aide du code MCNPx [60] et HTAPE3X [61]. Une seconde étape consiste à convoluer les spectres de neutrons expérimentaux aux sections efficaces obtenues à partir du code PACE 4 [62,63] et de la base de données EAF-07 [64] (base de données issue de calculs à l'aide du code TALYS). Les taux de production des autres éléments légers sont aussi calculés. Les calculs sont effectués pour une cible d' Al_2O_3 de densité $1,33 \text{ g.cm}^{-3}$, la densité de l'oxyde ayant été divisé par trois pour tenir compte de l'espace laissé libre dans le volume cible pour l'effusion des éléments

produits. Dans les calculs, les cibles considérées ne sont pas enrichies, l'abondance naturelle de chacun des isotopes de la cible est prise en compte.

Le schéma (Fig. 5) présente la géométrie du faisceau primaire, du convertisseur et de la cible d' Al_2O_3 . Elle est choisie identique à la configuration du système de production comportant la cible d'UCx. Un faisceau de deutons de 40 MeV est implanté dans une cible tournante de carbone appelée convertisseur. La forme du faisceau primaire est considérée gaussienne. L'important flux de neutrons ainsi produit irradie une cible d' Al_2O_3 placée à 4 cm de la face avant du convertisseur. C'est cette géométrie qui est utilisée pour faire les calculs MCNPx/HTAPE3X.

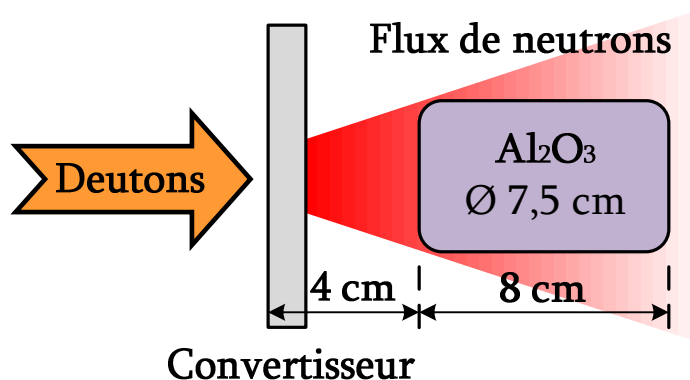


Fig. 5 _ Schéma du système de production représentative de la géométrie utilisée dans les calculs MCNPx/HTAPE3X.

3.3.1. Calculs MCNPx / HTAPE3X.

MCNPx (Monte Carlo N-Particules eXtended, version 2.6.0) [60] est un code Monte Carlo qui permet de modéliser le transport et les interactions de rayonnements avec la matière. Il est utilisable pour un grand nombre de particules et sur une large gamme d'énergie. Il présente l'avantage de prendre en compte la cassure (*break-up*) du deuton pour la production des neutrons. Il utilise les dernières bases de données de sections efficaces. Pour les types de particules où les gammes en énergie pour lesquelles les données tabulées n'existent pas, il utilise des modèles physiques. Htape3X [61] est un code qui traite les données du fichier de sortie (historique) créé par MCNPx. A partir de ces données, le code permet de calculer le taux de production de noyaux résiduels.

3.3.1.1. Calcul du spectre de neutrons

3.3.1.1.1. Comparaison des différents modèles.

Une première étape consiste à contrôler le spectre de neutrons reçu par la cible d' Al_2O_3 et calculé par MCNPx. Différents modèles sont disponibles dans

MCNPx pour la cascade intranucléaire/pré-équilibre : Bertini [65,66], ISABEL [67] et INCL4 [68] et pour la fission et l'évaporation : Dresner [69] et ABLA [70]. Le modèle CEM03 [71] est aussi disponible et possède son propre modèle d'évaporation. Les processus de cascade intranucléaire et de pré-équilibre interviennent à haute énergie et sont donc censés peu intervenir dans notre processus de production où l'énergie des deutons est comprise entre 0 et 40 MeV (celle des neutrons est inférieure à 40 MeV). Les calculs sont menés avec ces différents modèles afin de contrôler leurs influences. Les flux de neutrons ainsi obtenus sont présentés sur le graphique ci-dessous (Fig. 6). Ils sont donnés en nombre de neutrons par deuton dans une gamme d'énergie de 1 MeV. Le flux dans la cible est défini par le rapport du libre parcours moyen des neutrons dans la cible sur son volume. Les calculs sont effectués avec une statistique élevée (2×10^7 deutons) conduisant à un temps de calcul relativement long (2 jours).

Les modèles de cascade intranucléaire/pré-équilibre ISABEL, Bertini et CEM03 conduisent à un spectre de neutrons similaire. Il présente un maximum de $1,05 \times 10^{-5} \text{ n.d}^{-1}.\text{MeV}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ à environ 12 MeV. A plus haute énergie il chute lentement jusqu'à 40 MeV. Le modèle INCL4 diffère des autres modèles ; le flux est relativement constant autour d'une valeur de $1 \times 10^{-5} \text{ n.d}^{-1}.\text{MeV}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ entre 0 et 15 MeV. Au delà de 15 MeV, il chute rapidement et devient inférieur à ce que donnent les autres modèles. Le modèle d'évaporation Dresner induit une remontée du flux de neutrons pour une énergie inférieure à 3 MeV que le modèle ABLA n'induit pas.

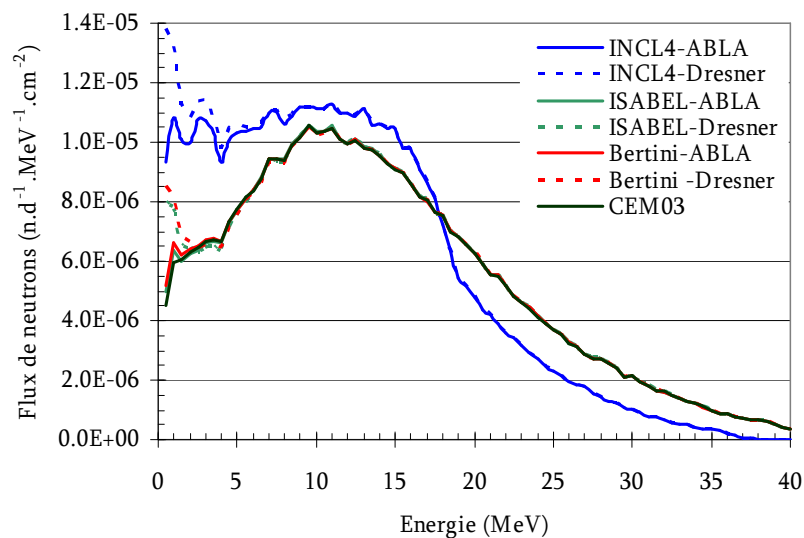


Fig. 6 _ Allure du flux de neutrons reçu par la cible et calculé avec MCNPx selon différents modèles.

3.3.1.1.2. Importance des neutrons de seconde génération.

Une partie du flux de neutrons reçue par la cible provient des neutrons de seconde génération, issus de réactions dans cette cible. Dans le cas de la cible de carbure d'uranium, la proportion de neutrons de 2nd génération est importante. Une simulation MCNPx permet de calculer cet effet dans le cas d'une cible d'oxyde d'aluminium. La différence entre le calcul effectué avec la cible pleine et la cible vide (Fig. 7) est représentative des neutrons de seconde génération, mais aussi de la thermalisation des neutrons dans la cible. Le modèle utilisé pour la simulation est ISABEL-ABLA avec une statistique impliquant 2×10^7 deutons. Il apparaît que l'influence de la présence du matériau cible est minime, peu de neutrons secondaires étant produits dans la cible d' Al_2O_3 .

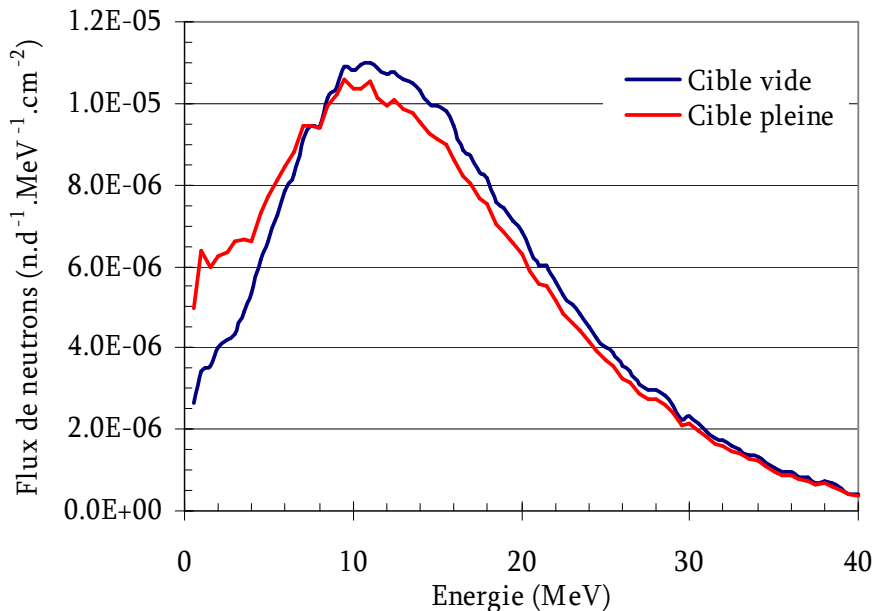


Fig. 7 _ Comparaison du spectre de neutrons perçut par une cible d' Al_2O_3 (courbe rouge) et par le même volume cible mais vide de toute matière (courbe bleue).

3.3.1.1.3. Comparaison du flux calculé aux mesures expérimentales.

La distribution en énergie et en angles du flux de neutrons produit par l'impact d'un faisceau de deutons à 40 MeV sur un convertisseur en carbone a été mesurée lors d'une campagne d'expériences menée par G. Lhersonneau *et al.* [72]. Elle a été mesurée, par la méthode d'activation, en irradiant des feuilles placées à différents angles autour du point d'impact des deutons sur la cible de carbone. A partir de ces données expérimentales, il a été possible de calculer le flux reçu par une section de la cible située sur la face avant, au milieu et sur la face arrière de la cible définie dans la géométrie présentée précédemment (voir Fig. 5). Ce flux est

comparé aux flux calculés avec les modèles ISABEL-ABLA et INCL4-Dresner dans une cible fine (1 mm d'épaisseur) placée à ces différentes positions. Pour obtenir le nombre de neutrons par deutons et par MeV, le flux calculé par MCNPx est multiplié par la surface de la face avant de la cible. Les résultats sont présentés sur les graphiques suivants (Fig. 8). Pour les deux modèles, le flux calculé avec MCNPx présente une amplitude plus importante que la mesure expérimentale. Ce point a déjà été évoqué dans l'article suivant [72]. La forte remontée du flux de neutrons à basse énergie (< 3 MeV) observée expérimentalement est due aux neutrons d'évaporation. Ce mécanisme ne semble pas être pris en compte dans MCNPx. Toutefois, alors que le flux calculé avec le modèle ISABEL-ABLA chute fortement en dessous de 10 MeV, celui calculé avec INCL4-Dresner présente une forme plus proche des mesures. Par conséquent, les taux de production finaux présentés seront issus de calculs avec le modèle INCL4-Dresner. Ils seront surestimés car le flux de neutrons, à partir duquel ils seront calculés, est deux fois plus élevé que le flux mesuré expérimentalement.

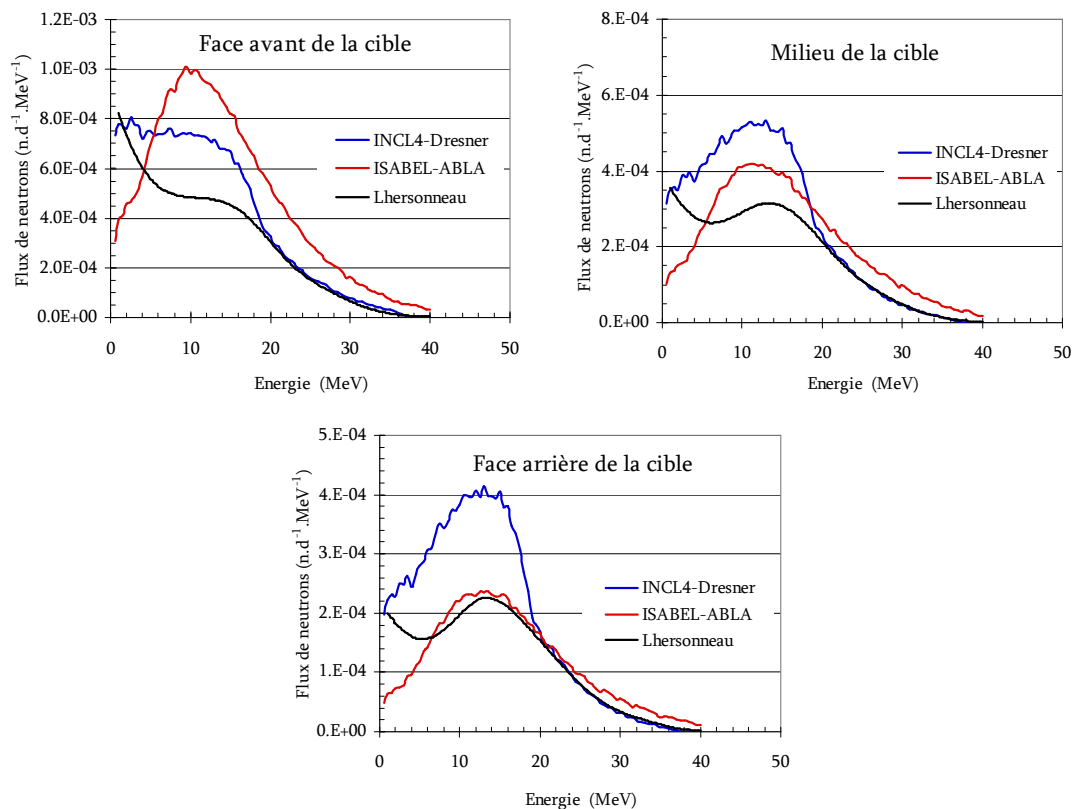


Fig. 8 _ Comparaison du spectre de neutrons mesuré expérimentalement [72] et calculé avec MCNPx pour les modèles ISABEL-ABLA et INCL4-Dresner. Cette comparaison a été effectuée en face avant, en milieu et en face arrière de la cible.

3.3.1.2. Taux de production.

Le code HTAPE3X a ensuite été utilisé afin de calculer les taux de production des noyaux résiduels produits dans la cible d' Al_2O_3 . Dans un premier temps, une série de calculs rapides, avec une statistique moins importante (10^6 deutons), est effectuée pour les différents modèles disponibles avec MCNPx. Les résultats sont présentés sur le graphique ci-dessous (Fig. 9). Il apparaît que les taux de production calculés peuvent varier d'un ordre de grandeur suivant les modèles utilisés.

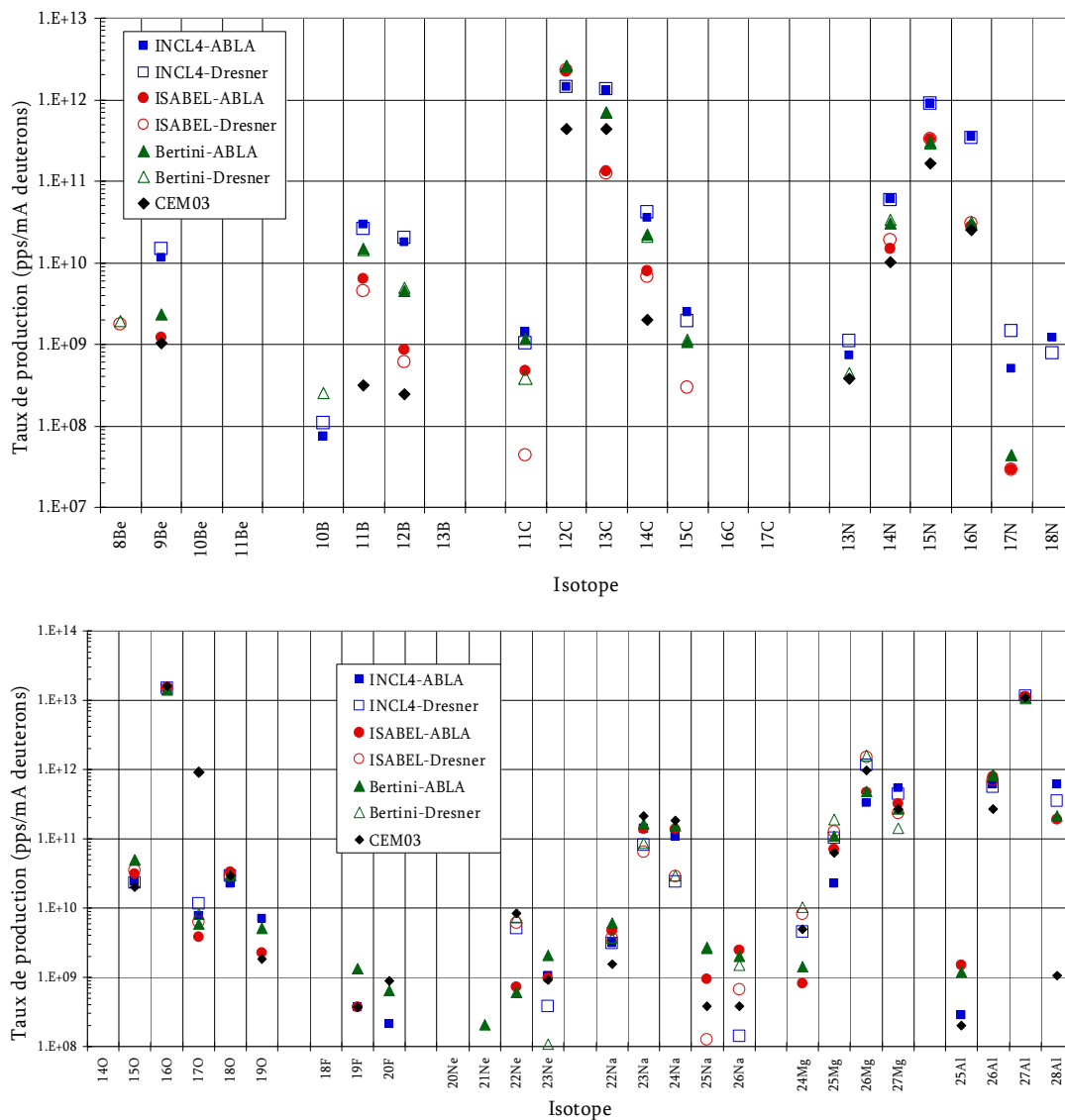


Fig. 9 _ Calcul du taux de production des noyaux résiduels dans la cible d' Al_2O_3 en fonction des modèles.

Un calcul est effectué avec une meilleure statistique (2×10^7 deutons) pour les modèles ISABEL-ABLA et INCL4-Dresner, modèles représentatifs de la variété de flux de neutrons calculés avec MCNPx (Fig. 6). Afin de connaître la contribution des réactions sur chaque isotope de la cible, trois calculs sont effectués avec trois cibles différentes :

- avec une cible ne contenant que de l' ^{27}Al et avec une densité de $0,7 \text{ g.cm}^{-3}$
- avec une cible ne contenant que de l' ^{16}O et avec une densité de $0,62 \text{ g.cm}^{-3}$
- avec une cible ne contenant que de l' ^{18}O et avec une densité de $1,25 \times 10^{-3} \text{ g.cm}^{-3}$

Ces densités sont calculées de façon à rendre compte du nombre de noyaux de chacune des espèces contenues dans la cible d' Al_2O_3 . Les résultats sont présentés dans le tableau 1.

Réaction	Taux de production (pps/mA de deutons)	
	ISABEL-ABLA	INCL4-Dresner
$^{16}\text{O}(n,2p)^{15}\text{C}$	$7,2 \times 10^8$	$2,2 \times 10^9$
$^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$	$6,9 \times 10^{10}$	$3,5 \times 10^{11}$
$^{18}\text{O}(n,2\alpha)^{11}\text{Be}$	$5,2 \times 10^4$	$1,4 \times 10^6$
$^{18}\text{O}(n,\alpha)^{15}\text{C}$	$1,8 \times 10^5$	$4,9 \times 10^5$
$^{18}\text{O}(n,n2p)^{16}\text{C}$	$2,9 \times 10^5$	$2,0 \times 10^6$
$^{18}\text{O}(n,p2n)^{16}\text{N}$	$1,7 \times 10^7$	$2,1 \times 10^8$
$^{18}\text{O}(n,np)^{17}\text{N}$	$1,0 \times 10^6$	$1,0 \times 10^9$
$^{18}\text{O}(n,p)^{18}\text{N}$	$6,5 \times 10^7$	$5,8 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(n,2\alpha)^{20}\text{F}$	$5,5 \times 10^8$	$8,6 \times 10^7$
$^{27}\text{Al}(n,\alpha p)^{23}\text{Ne}$	$1,2 \times 10^9$	$2,3 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	$1,1 \times 10^{11}$	$2,3 \times 10^{10}$
$^{27}\text{Al}(n,n2p)^{25}\text{Na}$	$6,3 \times 10^8$	$4,7 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(n,2p)^{26}\text{Na}$	$7,5 \times 10^8$	$4,9 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	$2,8 \times 10^{11}$	$4,5 \times 10^{11}$

tableau 1 _Taux de productions calculés avec MCNPx/HTAPE3X pour le modèle ISABEL-ABLA et INCL4-Dresner.

Dans les calculs ci-dessus, nous avons imposé à MCNPx l'utilisation de modèles théoriques dans toute la gamme d'énergie puisque les sections efficaces expérimentales sont inconnues à l'exception des voies de réactions $^{27}\text{Al}(n,p)$ et $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$. L'utilisation de bases de données expérimentales est possible sous MCNPx mais les événements induits à partir de ces bases de données ne sont pas prises en compte par le code HTAPE3X. Ceci est gênant car ces modèles ne sont pas adaptés aux réactions à basses énergies et cela explique que les taux du tableau 1 soient parfois faibles pour certaines réactions (par exemple $^{18}\text{O}(n,\alpha)^{15}\text{C}$). Aussi, nous avons décidé de comparer ces résultats avec une deuxième approche complètement indépendante.

3.3.2. Calculs à partir des sections efficaces EAF-07 et PACE 4.

3.3.2.1. Section efficace.

Les sections efficaces expérimentales sont peu connues pour les réactions $^{18}\text{O}(n,\alpha)$ et $^{16}\text{O}(n,2p)$; seul un point a été mesuré par Schmidt-Hoenow [59] pour la réaction $^{18}\text{O}(n,\alpha)$. Il est comparé avec différentes valeurs reportées sur le graphique ci-dessous (Fig. 10). Un calcul est effectué avec le code PACE 4 [62], [63] sans modification des paramètres par défaut. Les valeurs de la base de données calculée EAF 07 [64] pour l'activation des matériaux sont aussi reportées sur ce graphique. Les valeurs reportées diffèrent en amplitude mais aussi dans la position du maximum. La section efficace pour la réaction $^{18}\text{O}(n,\alpha)$ reste néanmoins importante dans une gamme d'énergie correspondant au spectre de neutrons disponibles. Pour la réaction $^{16}\text{O}(n,2p)$ les sections efficaces sont nettement inférieures. De plus, le seuil en énergie de cette réaction est beaucoup plus élevé : 22,4 MeV. Par conséquent, il n'y a pas un bon recouvrement de la fonction d'excitation avec le spectre de neutrons (les neutrons de plus de 30 MeV ne représentent que 2% du flux reçu par la cible). Il est à noter que ces deux codes de calcul ne sont pas les mieux adaptés. PACE 4 considère essentiellement la fusion évaporation, sans prendre en compte les réactions directes d'échange de particules (ce qui explique probablement la faible section efficace à basse énergie). La base EAF 07 est générée en utilisant des paramètres globaux, ce qui est critique pour les noyaux légers. En effet, leurs états excités sont composés majoritairement de niveaux discrets plutôt que d'un continuum comme pour les noyaux plus lourds.

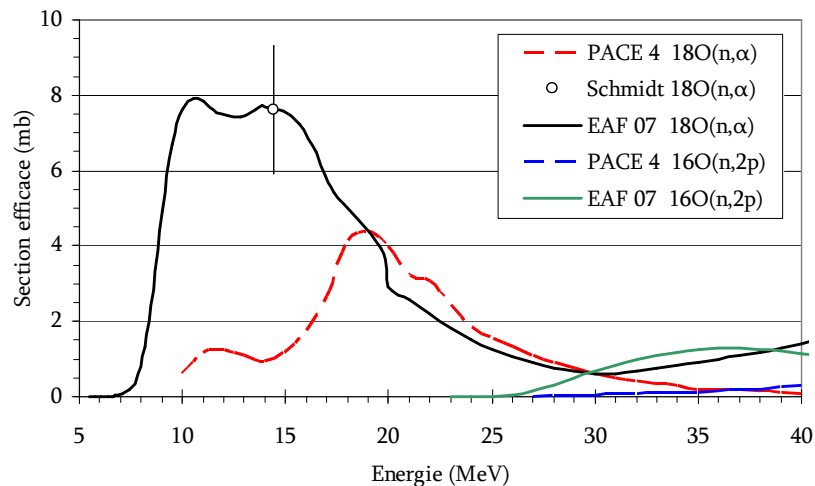


Fig. 10 _ Comparaison des sections efficaces des réactions $^{18}\text{O}(n,\alpha)^{15}\text{C}$ et $^{16}\text{O}(n,2p)^{15}\text{C}$ issues de la littérature [59], d'un calcul réalisé avec PACE 4 et de la base de donnée EAF 07.

3.3.2.2. Taux de production

A partir de ces sections efficaces, le taux de production de différents éléments dans une cible d' Al_2O_3 est calculé à l'aide du code FICNER [73,74]. Il s'agit d'un programme en Fortran de calcul analytique du taux de production pour une réaction donnée. Il présente l'avantage d'être plus rapide qu'un programme basé sur la méthode de Monte-Carlo. Les données d'entrée qui sont fournies au code sont :

- la fonction d'excitation de la réaction $\sigma(E)$,
- la distribution en énergie et en angle des neutrons $\Phi(E, \theta)$,
- la géométrie de la cible,
- la taille du faisceau de deutons.

Ce calcul s'appuie sur plusieurs approximations : la trajectoire des neutrons dans la cible est supposée rectiligne, les réactions secondaires ne sont pas prises en compte. Le calcul effectué par le code est décrit par la formule (1). Un neutron émis à la position (x, y) avec les angles (θ, φ) rencontre sur son parcours N_c atomes de la cible. Un coefficient d'atténuation des neutrons dans la cible μ est pris en compte, ($\mu = 12,6 \text{ m}^{-1}$, [75,76]). Le schéma (Fig. 11) illustre ce calcul.

$$T_{\text{prod}} = \int \sigma(E) \cdot \Phi(E, \theta) \cdot \frac{1 - e^{-\mu \cdot N_c(x, y, \theta, \varphi)}}{\mu} dx \cdot dy \cdot d\theta \cdot d\varphi \cdot dE \quad (1)$$

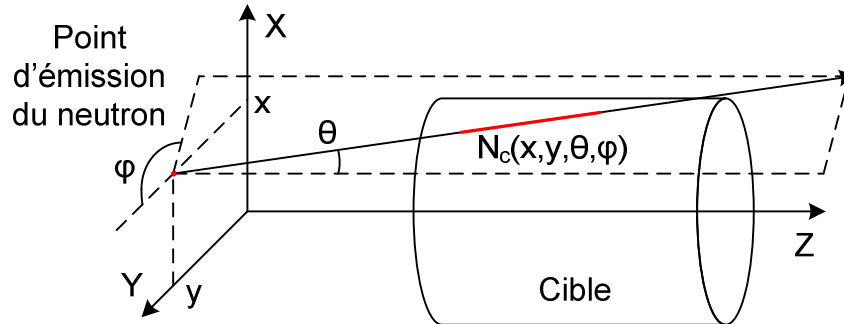


Fig. 11 _ Schéma illustrant le calcul du taux de production effectué par le code FICNER.

Les calculs sont effectués pour une géométrie de la cible identique à celle utilisée dans les calculs MCNPx. La distribution en énergie et en angle du flux de neutrons utilisée pour le calcul est présentée sur le graphique ci-dessous (Fig. 12). Elle est issue de la campagne expérimentale [72].

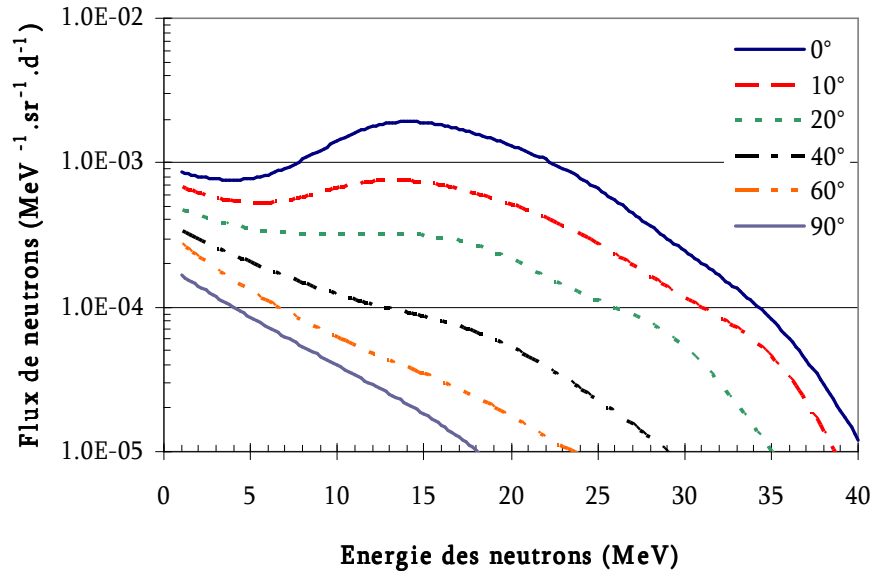


Fig. 12 _ Mesure de la distribution en angle et en énergie des neutrons produit par l'implantation du faisceau de deutons sur le convertisseur en graphite [72]. Elle est donnée par MeV, par stéradian et par deuton incident.

Les résultats sont présentés dans le tableau 2, les calculs n'ont pas été limités au seul cas du ^{15}C mais effectués pour tous les éléments d'intérêts.

Réaction	Taux de production (pps/mA de d) PACE 4	Taux de production (pps/mA de d) EAF 07
$^{16}\text{O}(\text{n},2\text{p})^{15}\text{C}$	$1,5 \times 10^7$	$1,6 \times 10^8$
$^{16}\text{O}(\text{n},\text{p})^{16}\text{N}$	$3,7 \times 10^8$	$6,3 \times 10^{10}$
$^{18}\text{O}(\text{n},2\alpha)^{11}\text{Be}$	$5,3 \times 10^4$	$7,0 \times 10^4$
$^{18}\text{O}(\text{n},\alpha)^{15}\text{C}$	$9,5 \times 10^6$	$2,6 \times 10^7$
$^{18}\text{O}(\text{n},\text{n}2\text{p})^{16}\text{C}$	-	$4,6 \times 10^4$
$^{18}\text{O}(\text{n},\text{p}2\text{n})^{16}\text{N}$	$2,8 \times 10^3$	$2,7 \times 10^7$
$^{18}\text{O}(\text{n},\text{np})^{17}\text{N}$	$2,3 \times 10^6$	$6,7 \times 10^7$
$^{18}\text{O}(\text{n},\text{p})^{18}\text{N}$	$2,7 \times 10^5$	$1,5 \times 10^7$
$^{27}\text{Al}(\text{n},2\alpha)^{20}\text{F}$	$1,4 \times 10^8$	$2,3 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha\text{p})^{23}\text{Ne}$	$1,3 \times 10^9$	$6,6 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(\text{n},\alpha)^{24}\text{Na}$	$9,3 \times 10^9$	$1,4 \times 10^{11}$
$^{27}\text{Al}(\text{n},\text{n}2\text{p})^{25}\text{Na}$	$1,3 \times 10^8$	$1,2 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(\text{n},2\text{p})^{26}\text{Na}$	$8,5 \times 10^7$	$1,9 \times 10^8$
$^{27}\text{Al}(\text{n},2\text{p})^{27}\text{Mg}$	$2,4 \times 10^{10}$	$1,1 \times 10^{11}$

tableau 2 _ Taux de production calculés dans une cible d' Al_2O_3 à l'aide du code FICNER et des sections efficaces issues de PACE 4 et EAF 07.

3.3.3. Taux de production potentiel sur SPIRAL 1.

Les taux de production précédents ont été calculés dans le cadre des conditions de SPIRAL 2, c'est-à-dire produit à l'aide d'un flux de neutrons. L'utilisation de l'installation SPIRAL 2 sera-t-elle judicieuse s'il est possible d'atteindre un taux équivalent ou supérieur avec l'installation existante SPIRAL 1 ? Il convient de s'en assurer. En effet, il est prévu de procéder à une amélioration de SPIRAL 1 permettant d'étendre la palette de faisceaux disponibles d'ici à la mise en exploitation de SPIRAL 2 [77].

Le mécanisme actuellement utilisé avec SPIRAL 1 est la fragmentation des noyaux du faisceau primaire sur une cible de graphite. La cible est reliée à la source ECR Nanogan III par un tube froid [78]. Cette méthode limite les éléments produits aux espèces gazeuses. L'utilisation d'autres sources d'ions pourrait permettre la production d'éléments condensables.

Les éléments d'intérêts considérés précédemment pourraient être produits par fragmentation du projectile dans une cible de graphite. Le calcul de leur taux de production est effectué à l'aide du code SigmaSira basé sur la paramétrisation d'EPAX [79]. Le faisceau primaire, son énergie et le taux de production calculé sont présentés dans le tableau 3. Les calculs sont effectués pour une puissance du faisceau primaire de 1,5 kW, puissance maximale actuellement admissible par la cible de production.

Faisceau primaire		Isotope produit	Taux de production (pps)
Isotope	Energie (MeV/A)		
¹⁸ O	76	¹¹ Be	1,8×10 ⁹
		¹⁵ C	2,3×10 ⁹
		¹⁶ C	6,1×10 ⁸
		¹⁶ N	1,1×10 ¹⁰
		¹⁷ N	7,2×10 ⁹
²² Ne	80	¹⁸ N	2,3×10 ⁸
		²⁰ F	8,6×10 ⁹
²⁶ Mg	80	²³ Ne	1,7×10 ⁹
		²⁴ Na	7,0×10 ⁹
		²⁵ Na	5,0×10 ⁹
³⁶ S	77,5	²⁶ Na	2,5×10 ⁸
		²⁷ Mg	1,2×10 ⁹

tableau 3 _ Taux de production dans la cible potentiellement disponible par fragmentation du projectile sur SPIRAL 1.

Pour produire le ¹⁵C (et ¹⁶C) par la méthode ISOL, il n'est pas possible d'utiliser une cible de carbone épaisse car le carbone radioactif produit ne diffusera pas hors

de la cible de carbone sans évaporation et donc destruction rapide de celle-ci. Sur SIRA, des tests ont été menés à très faible intensité sur des cibles d'oxydes [46]. Néanmoins, l'implantation d'une intensité importante de faisceau dans une cible isolante peut conduire à des claquages et à sa dégradation. Une solution pourrait être d'utiliser une cible de carbone suffisamment fine (7 mm) pour que l'énergie de recul du ^{15}C , lui permette d'en sortir. Un stoppeur d'oxyde serait placé en aval pour arrêter le ^{15}C et former la molécule CO. La cible de carbone doit être séparée du stoppeur d'oxyde pour éviter leur dégradation rapide par réaction chimique à haute température. Une fenêtre mince de rhénium peut être utilisée comme cela a été démontré expérimentalement à ISOLDE [56,80]. Un four peut être utilisé pour contrôler la température du stoppeur et optimiser la formation de la molécule CO.

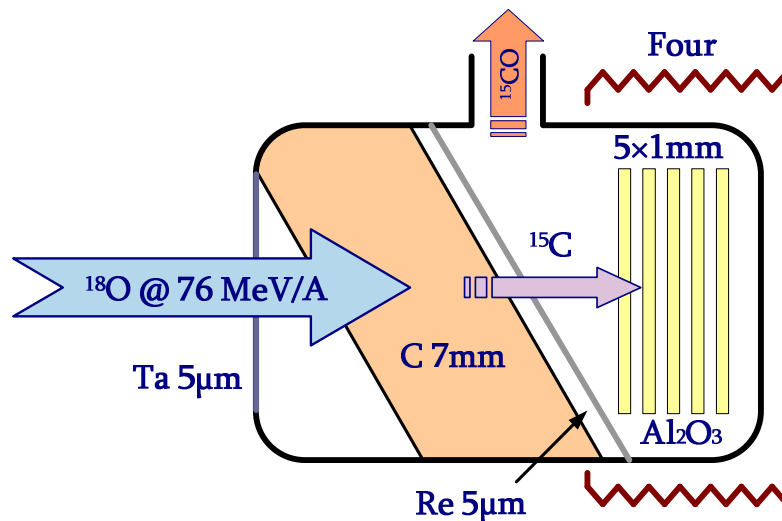


Fig. 13_ Schéma de principe du système de production de ^{15}C sur SPIRAL 1.

3.4. Comparaison et conclusions.

Les taux de production calculés à l'aide de MCNPx et du modèle INCL4-Dresner, des sections efficaces de PACE 4 et de la base de données d'activation EAF 07 sont comparés sur le graphique ci-dessous (Fig. 14). Un écart important entre ces taux est constaté allant jusqu'à deux ordres de grandeur. Cet écart illustre le manque de sections efficaces expérimentales et le manque de données d'entrées des codes de calculs pour ces noyaux.

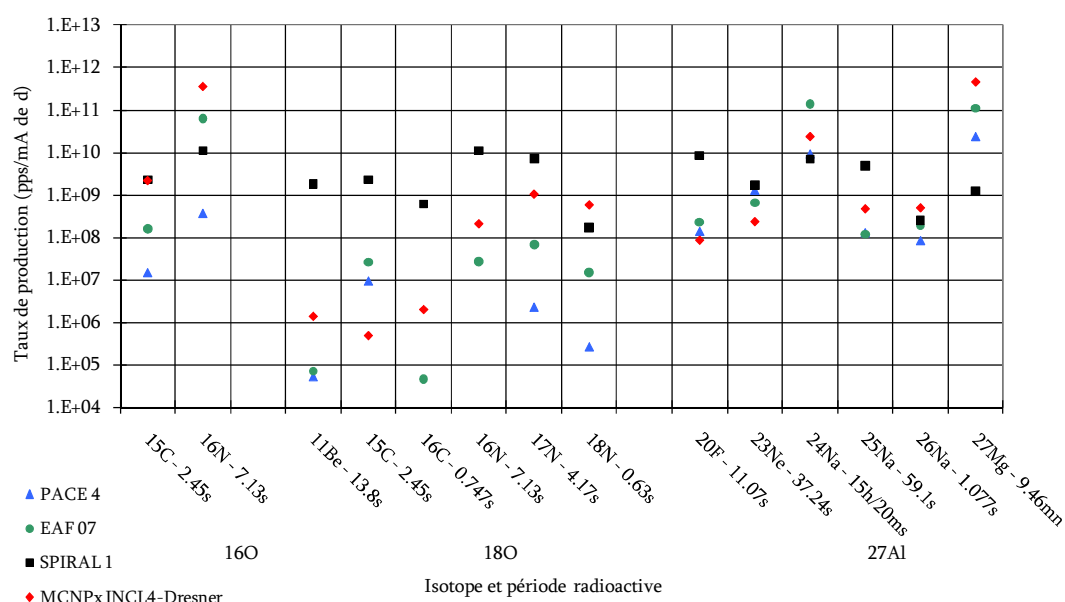


Fig. 14_ Comparaison des taux de production, calculés dans une cible d' Al_2O_3 , à l'aide de MCNPx et du modèle INCL4-Dresner, des sections efficaces de PACE 4. Les taux de production potentiellement disponibles sur SPIRAL 1 sont aussi présentés.

Les taux de production potentiellement attendus avec SPIRAL 1 sont aussi reportés sur ce graphique. Avec SPIRAL 2, les taux de production des noyaux de ^{27}Mg et de manière moins évidente de ^{24}Na semblent être plus importants qu'avec SPIRAL 1. Concernant les noyaux de ^{11}Be , $^{15,16}\text{C}$, $^{16,17,18}\text{N}$, ^{23}Ne et $^{25,26}\text{Na}$, SPIRAL 1 semble être compétitif. Plus précisément, les taux calculés pour 1 mA de deutons dans la cible d' Al_2O_3 (avec une abondance naturelle de 0,2% d' ^{18}O) donnent $1,1 \times 10^8$ pps de ^{15}C avec PACE 4, $3,2 \times 10^7$ pps avec EAF-07 et $7,2 \times 10^8$ pps avec MCNPx. Avec SPIRAL 1 le taux est estimé à $2,3 \times 10^9$ pps.

Une cible de MgO permettrait de mieux produire les noyaux ^{23}Ne et $^{24,25,26}\text{Na}$ qu'avec une cible d' Al_2O_3 . Cependant, la température de fonctionnement d'une cible de MgO est moins élevée que celle d'une cible d' Al_2O_3 (voir annexe 1.1). Les taux de production dans une cible MgO, estimés par M.-G. St-Laurent et O. Bajeat

[39], sont reportés dans le tableau 4. Le spectre de neutrons issus des données de G. Lhersonneau [81] et les sections efficaces de NNDC et d'EAF 07 ont été utilisés.

Réactions	Taux de production pour 1 mA deutons
$^{26}\text{Mg}(n,\alpha)^{23}\text{Ne}$ et $^{24}\text{Mg}(n,2p)^{23}\text{Ne}$	1 à 2×10^{10}
$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$	3 à 7×10^{11}
$^{25}\text{Mg}(n,p)^{25}\text{Na}$	1,3 à 2×10^{10}
$^{26}\text{Mg}(n,p)^{26}\text{Na}$	4 à 8×10^9

tableau 4 _ Taux dans la cible de production estimés à partir de la cible de MgO (densité 1,193 g/cm³).

L'enrichissement en ^{18}O de la cible d'oxyde envisagée pour SPIRAL 2 n'offre pas d'importantes perspectives d'augmentation des taux produits. De plus, la cible envisagée pour SPIRAL 2 est nettement plus volumineuse que celle considérée pour SPIRAL 1, ce qui conduirait à augmenter les pertes par effusion par rapport à la cible de SPIRAL 1. Enfin, l'ionisation à des états de charge importants de la molécule CO a déjà été mise en évidence avec SPIRAL 1 [82]. Avec SPIRAL 2, la technique d'augmentation de charge par la méthode « $1^+/\text{n}^+$ » pour les atomes légers n'a pas encore démontré son efficacité [25]. Par conséquent, l'étude de la production du ^{15}C avec SPIRAL 2 est mise en suspens.

4. Production d' ^{14}O .

Le noyau d' ^{14}O fait déjà l'objet de trois propositions d'étude dans le cadre de SPIRAL 2 :

- La mesure ultra précise de la durée de vie de l' ^{14}O , noyau présentant une décroissance β super-permise, peut être utilisée pour déterminer la constante de couplage (G_V). Cette mesure permet d'obtenir une précision supplémentaire sur l'élément V_{ud} [83,84] dans la matrice de Cabbibo-Kobayashi-Maskawa (CKM) [85,86].

- Le cycle HCNO (*hot-CNO*) est une des chaînes de réactions intervenant dans certains environnements astrophysiques extrêmement chauds et denses. La réaction $^{14}\text{O}(\alpha, p)^{17}\text{F}$ permet d'accélérer le cycle CNO, la réaction $^{14}\text{O} + p \rightarrow ^{15}\text{F}$ produisant un noyau non lié, elle revient instantanément vers $^{15}\text{F} \rightarrow ^{14}\text{O} + p$, le noyau d' ^{14}O constituant un point d'attente. Elle offre un passage depuis le cycle HCNO vers le processus de capture rapide du proton (rp) pour lequel les énergies générées peuvent être supérieures de plusieurs ordres de grandeur à celles du cycle HCNO. Ainsi, la mesure de la section efficace de cette réaction permet, par exemple, de mieux comprendre les phénomènes à l'origine des gerbes explosives de rayon X (*X-rays burst*) observées dans l'univers [87].

- Une autre application envisagée au GANIL est l'étude du noyau non lié ^{15}F . La production de ^{15}F par la réaction $^{14}\text{O} + p$ dans différents états excités pourrait permettre d'observer les décroissances γ entre deux états non liés de ce noyau radioactif et de mesurer l'élargissement en énergie de son état fondamental. Ces observations pourraient ouvrir la voie à un nouveau paradigme [88].

Dans cette partie, les méthodes existantes de production d'un faisceau d' ^{14}O sont détaillées avant de présenter celle qui est choisie pour SPIRAL 2. Un des principaux inconvénients de cette méthode réside dans l'important dépôt de puissance du faisceau primaire dans la cible de production. Par conséquent, une étude thermique est menée afin de vérifier ce point. Une incertitude demeure quant à la valeur de la section efficace de production $^{12}\text{C}(^3\text{He}, n)^{14}\text{O}$, ce paramètre conditionnant fortement l'estimation de l'intensité disponible avec SPIRAL 2. Une nouvelle mesure a donc été réalisée.

4.1. Revue des méthodes utilisées.

Dans les différentes installations qui délivrent aujourd'hui un faisceau d' ^{14}O , deux méthodes sont couramment utilisées. La première est caractérisée par l'utilisation d'une cible solide et la formation de la molécule C^{14}O . La seconde fait intervenir une cible gazeuse d'azote nécessitant une séparation chimique de l' ^{14}O produit.

4.1.1.1. Avec une cible solide (C, SiC).

Toutes les méthodes présentées ci-dessous font intervenir une cible solide contenant du carbone. L'oxygène est produit par divers mécanismes de réaction dans la cible et se combine au carbone de cette cible pour former la molécule $C^{14}O$ volatile à température ambiante (contrairement à ^{14}O). C'est sous cette forme qu'il peut transiter par les zones froides situées entre la cible de production et la source.

Avec SPIRAL 1 au GANIL [14], le faisceau d' ^{14}O est disponible pour les expériences à une énergie de 1,7 jusqu'à 25,4 MeV/A. Pour l'état de charge 3^+ une intensité de 5×10^4 pps est mesurée [82]. Il est obtenu par la fragmentation d'un faisceau primaire d' ^{16}O de 95 MeV/A sur une cible de graphite. La puissance du faisceau primaire déposée dans la cible est limitée à 1,4 kW. La source ECR d'ions multichargés Nanogan III [78] ionise l' ^{14}O . Cette méthode de production est relativement simple et fiable. Il convient toutefois de bien contrôler la température de la cible pour favoriser la diffusion de l' ^{14}O , la formation et l'effusion de la molécule $C^{14}O$ [89,90].

A UCLN (Université Catholique de Louvain-La-Neuve, Belgique) [91], l'isotope ^{14}O est produit par la réaction de fusion évaporation $^{12}C(^3He,n)^{14}O$. Un faisceau primaire d' $^3He^+$ à 36 MeV et d'intensité maximale 5 μA est envoyé sur une cible de graphite portée à haute température [51]. La molécule $C^{14}O$ ainsi formée est ionisée dans une source FEBIAD 1^+ [86] ou dans une source ECR N^+ [92]. Une intensité sur la cible d'expérience de 10^5 pps a été mesurée. Cette installation est arrêtée pour la recherche en physique nucléaire fondamentale.

D'autres installations produisent également ce faisceau pour un état de charge 1^+ sous la forme moléculaire CO :

Le même mécanisme réactionnel que celui utilisé à UCLN est mis en œuvre au LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory, USA) [93] sur un système dédié à la production de faisceaux radioactifs à basse énergie [85,94]. Un faisceau primaire d' $^3He^+$ à 20 MeV et d'intensité 10 μA bombarde une cible de carbone aérogel chauffée à haute température (de 1200 à 2000 °C). Le $C^{14}O$ est ensuite ionisé dans la source ECR IRIS. L'intensité moyenne mesurée est de 2×10^7 pps [95].

L'installation ISAC à TRIUMF [44] produit l' ^{14}O par spallation des noyaux d'une cible de SiC à l'aide d'un faisceau de protons de 500 MeV [96]. Le $C^{14}O$ ainsi formé est ionisé dans une source FEBIAD de type MK-XI. L'intensité obtenue pour les expériences est de $6,3 \times 10^4$ pps [97].

Ces deux dernières installations ont aussi exploré la voie de la production d' ^{14}O avec une cible d'azote gazeuse.

4.1.1.2. Avec une cible gazeuse d'azote.

Cette méthode de production est semblable à celle couramment employée pour produire l'isotope ^{15}O [98-100], radio-traceur important pour l'imagerie PET (Tomographie par Emission de Positons). Elle est basée sur le bombardement d'une cible gazeuse d'azote par un faisceau de deutons pour ^{15}O ou de protons pour ^{14}O ($^{14}\text{N}(\text{p},\text{n})^{14}\text{O}$). Il faut ensuite séparer chimiquement l'oxygène produit de l'azote cible.

Le développement d'un faisceau d' ^{14}O sur le projet BEARS [101-103], constitue un défi technique dû à la courte durée de vie de l' ^{14}O (71 s), aux opérations chimiques à effectuer dans la cible et à la longue distance entre la cible et la source (350 m). Le schéma (Fig. 15), extrait de l'article de J. Powell *et al.* [104], présente la méthode employée. Un faisceau de protons de 40 μA à 10 MeV bombarde une cible d'azote gazeux à haute pression. Un faible pourcentage d'hydrogène est ajouté à l'azote afin de produire l'oxygène sous la forme H_2^{14}O sous phase gazeuse. Après 90 s d'irradiation de la cible, l'eau produite est déchargée, puis gelée à l'aide d'un serpentín alimenté en air froid (-40°C). Cette opération permet de purifier l'eau des autres composants gazeux de la cible. Une résistance chauffe alors brusquement l'eau préalablement gelée. Les molécules H_2^{14}O sont transportées par un flux d'hélium jusque dans un four en carbone. À l'intérieur du four, des granulés de carbone chauffés ($1000\text{--}1100^\circ\text{C}$) permettent la formation de monoxyde de carbone. Le C^{14}O est finalement envoyé dans un catalyseur en platine à 180°C permettant la formation de dioxyde de carbone. La durée totale du processus est d'environ 15 s. Le dioxyde de carbone obtenu est alors injecté dans une source ECR. Le taux de production d' ^{14}O mesuré pour l'expérience est de 10^4 pps [101].

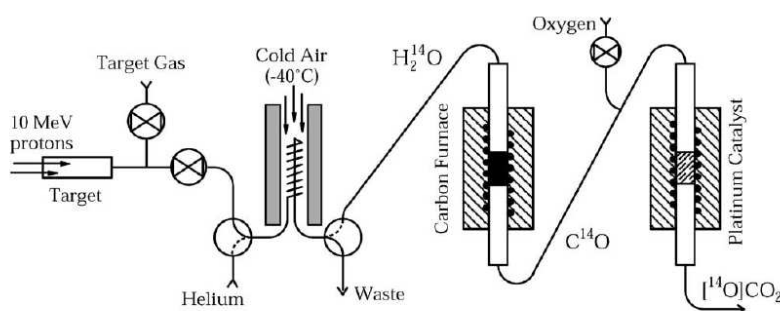


Fig. 15 _ Schéma du système de production utilisé à LBNL pour produire l' ^{14}O [104].

Il est proposé d'augmenter l'intensité d' ^{14}O disponible à TRIUMF par une méthode similaire à celle utilisée au LBNL. Cette étude est décrite en détails dans la thèse de S. Lapi [105]. Le faisceau primaire de protons utilisé présente une

énergie moyenne de 13 MeV. Avec cette technique, l'intensité disponible pour les expériences est estimée à $1,3 \times 10^7$ pps [106].

4.2. Méthode choisie pour SPIRAL 2.

Parmi tous les mécanismes de réaction présentés précédemment, la fragmentation du projectile utilisée à SPIRAL 1 ou la spallation d'une cible de SiC par un faisceau de protons utilisée à TRIUMF ne sont pas adaptées à SPIRAL 2. En effet, l'énergie du faisceau de protons ou d' ^{16}O disponible avec SPIRAL 2 sera trop faible pour que ces mécanismes réactionnels soient efficaces. Il reste donc les deux réactions $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ et $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$. Le LINAC de SPIRAL 2 permettra de délivrer un faisceau de protons de 5 mA jusqu'à 33 MeV et un faisceau d' $^3\text{He}^+$ de 1 mA à 43,5 MeV [107]. Laquelle de ces deux méthodes permettra d'obtenir les meilleurs taux de production sur SPIRAL 2 ?

4.2.1. Fonction d'excitation.

Afin d'estimer la meilleure méthode à appliquer sur SPIRAL 2, la connaissance des sections efficaces des différents mécanismes réactionnels envisageables est cruciale. Nous avons donc recherché dans la littérature les articles présentant les fonctions d'excitation des réactions $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ et $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$.

Le graphique (Fig. 16) présente les valeurs de sections efficaces trouvées pour la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$. Trois auteurs reportent les sections efficaces qu'ils ont mesurées à basse énergie (entre 2 et 12 MeV).

- La forme et la valeur absolue de la fonction d'excitation présentée par Cirilov *et al.* [108] et par Hahn et Ricci [109] sont cohérentes. Elles présentent un maximum à 15 mb pour une énergie d'environ 5 MeV.

- La forme de la fonction d'excitation présentée par Osgood *et al.* [110] présente la même structure que dans les deux références précédentes avec d'importantes résonances à environ 3 et 7 MeV. La valeur absolue de la fonction est similaire pour des énergies inférieures à 4 MeV, mais au dessus elle devient supérieure à celle de Cirilov *et al.* et Hahn et Ricci. Elle atteint un maximum de 35 mb pour une énergie de 7 MeV.

- Le seul auteur présentant une mesure à plus haute énergie (jusqu'à 30 MeV) est Singh [111]. Toutefois, les valeurs données sont normalisées à plus basse énergie aux valeurs d'Osgood *et al.* La fonction d'excitation décroît de manière monotone de 27 mb à 6 MeV jusqu'à 12 mb à 30 MeV.

- Un calcul est effectué avec le code PACE 4 sans modification des paramètres par défaut. Dans ces conditions standards, le code ne reproduit aucune des mesures effectuées à basse énergie : des réactions sous la barrière coulombienne

ne sont pas calculées par le code. Pour des systèmes très légers, il faudrait prendre en compte la distribution des états excités et non une densité d'état globale.

- Le graphique est complété par les valeurs extraites de la base de données TENDL-2009 (TALYS-based Evaluated Nuclear Data Library) [112,113]. TENDL est une base de données nucléaire qui restitue les résultats du code de simulation de réactions nucléaires TALYS. Pour des énergies inférieures à 12 MeV, les valeurs de cette base de données sont cohérentes avec celles de la littérature. Entre 12 et 25 MeV la fonction d'excitation suit la même tendance que celle donnée par Singh. Au delà, elle chute progressivement pour atteindre 1 mb à 35 MeV.

Une importante incertitude demeure quant à la valeur de la section efficace pour des énergies supérieures à 10 MeV. De plus, nous verrons dans la partie 4.2.2 que la confrontation de ces données à des mesures de taux de production conduit à un désaccord important.

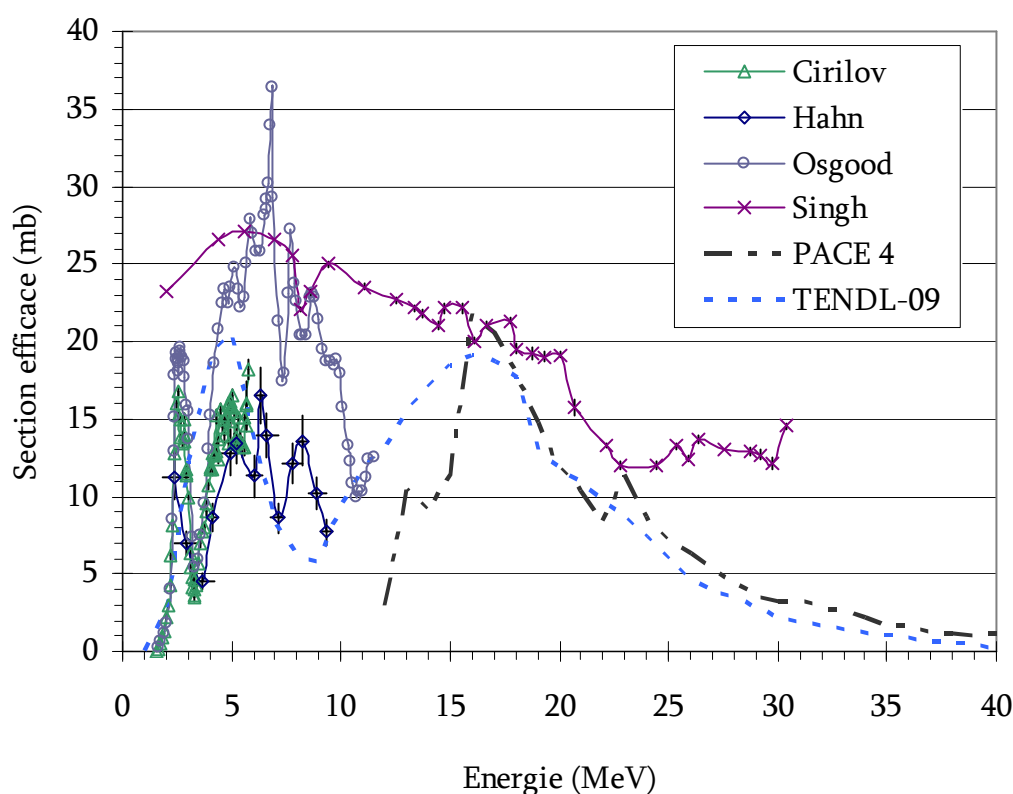


Fig. 16 _ Revue des fonctions d'excitation de la réaction $^{12}\text{C}(\beta\text{He},n)^{14}\text{O}$ trouvées dans la littérature. Les résultats d'un calcul réalisé avec PACE 4 sont aussi présentés ainsi que les valeurs extraites de la base de données TENDL-09.

Le graphique (Fig. 17) présente les valeurs qui ont été trouvées dans la littérature pour la réaction $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$. Dyer *et al.* [114]. Kovács *et al.* [115] et Kitwanga *et al.* [116] proposent des valeurs de sections efficaces qui semblent cohérentes. La fonction d'excitation présente des résonances entre 7 et 10 MeV et à 13 MeV. La valeur maximale est de 10 mb. Pour cette réaction, les valeurs de la base de données TENDL-09 [112,113] ne seront pas présentées car elles semblent erronées (maximum à 100 mb pour 14 MeV).

Les deux mécanismes réactionnels semblent donc exploitables dans une gamme d'énergie correspondant aux caractéristiques des faisceaux de protons et d' ^3He disponibles avec SPIRAL 2. La section efficace de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ serait plus élevée d'un facteur 2 à 4 que celle de la réaction $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$. Toutefois, pour vraiment pouvoir faire un choix entre les deux mécanismes réactionnels, il faut comparer les taux de production d' ^{14}O induits dans la cible en tenant compte des intensités des faisceaux et de l'épaisseur effective des cibles.

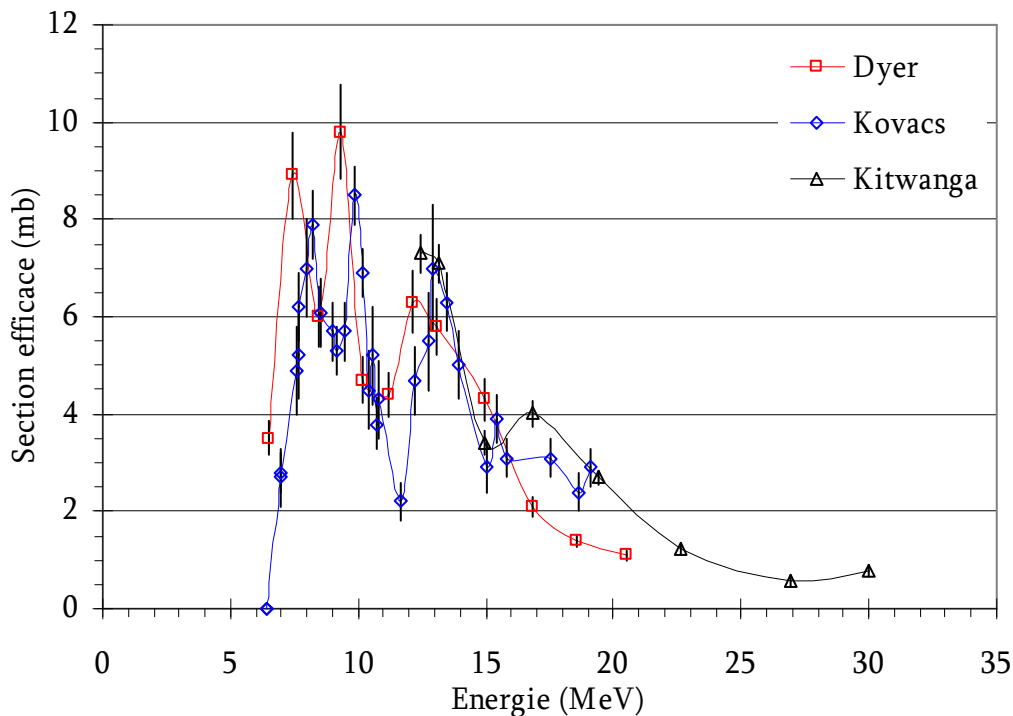


Fig. 17 _ Revue des fonctions d'excitation de la réaction $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$ obtenues dans la littérature.

4.2.2. Taux de production dans la cible.

A partir des sections efficaces présentées dans la partie précédente, il est possible de calculer les taux de production T_{prod} (pps) en cible épaisse (dite épaisse

si elle est suffisamment longue pour que les produits de réactions soient entièrement arrêtés dans celle-ci). La formule (2) est utilisée. Les calculs sont faits pour un faisceau primaire de 1 mA soit un flux Φ de $6,24 \times 10^{15}$ pps. La formule fait aussi intervenir la section efficace $\sigma(E)$ (cm^2) et le nombre d'atomes cible N_f (atomes.cm^{-2}) sur le parcours du faisceau lors de la perte d'énergie dE .

$$T_{\text{prod}} = \Phi \cdot \int_{\Delta E} N_f(E) \cdot \sigma(E) \cdot dE \quad (2)$$

La section efficace est interpolée par une fonction polynomiale par morceaux (fonction de *spline*). Les valeurs de la fonction d'excitation en sont déduites avec un pas de 0,5 MeV. Le taux de production est calculé pour chacune de ces tranches en énergie. Pour cela, la longueur utile de cible, correspondant au parcours dans la cible dans cette tranche d'énergie, est calculée à l'aide du code SRIM [117]. Les taux de production ainsi calculés sont présentés sur la figure ci-dessous (Fig. 18).

- La courbe bleue représente le calcul du taux de production pour la réaction $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$ avec les données extraite de Kovács *et al.* [115] pour une énergie inférieure à 21 MeV et Kitwanga *et al.* [116] à plus haute énergie. Elle atteint un taux de $5,7 \times 10^{11}$ pps/mA à 30 MeV.

- Les courbes rouge pointillée et orange sont calculées pour la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$. Elles sont issues des données de Singh [111] et de la base de données TENDL-2009 [112]. Les taux de production calculés à 30 MeV sont respectivement $5,7 \times 10^{11}$ pps/mA et $3,2 \times 10^{11}$ pps/mA.

- Nozaki et Iwamoto [118] ont mesuré l'activité à saturation d'une cible de carbone irradiée par un faisceau d' ^3He . Leurs données ne correspondant pas à des sections efficaces mais à des activités en cible épaisse. Elles n'ont pas été reportées sur le graphique (Fig. 16) car une différentiation est délicate mathématiquement. Les points rouges représentent les données qu'ils ont mesurées. Le taux de production mesuré à 30 MeV est de $7,5 \times 10^{10}$ pps/mA.

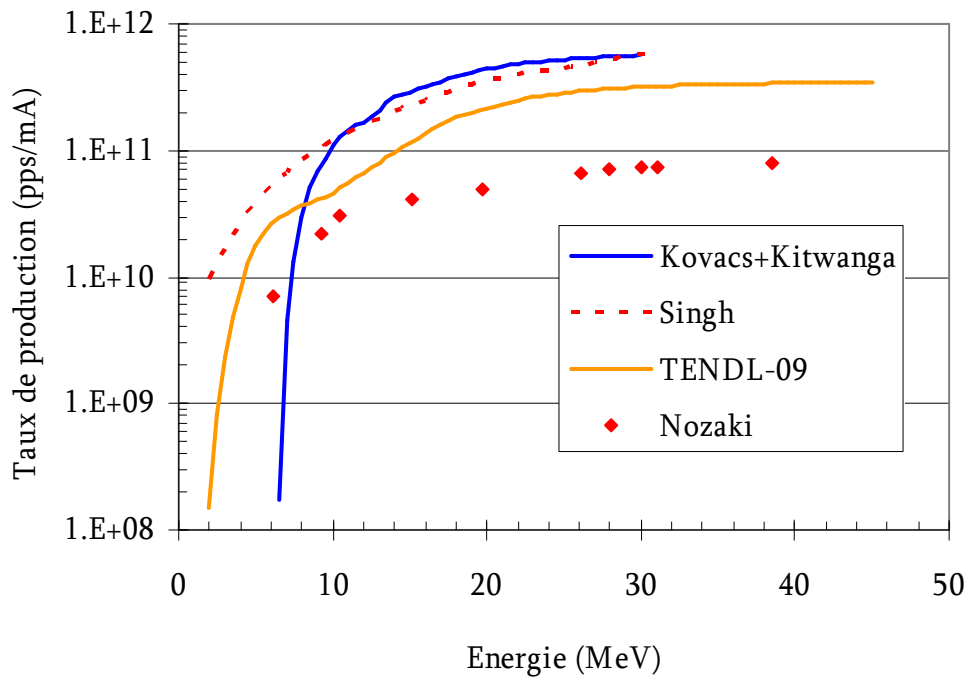


Fig. 18 _ Calculs du taux de production d' ^{14}O à saturation dans une cible épaisse pour un faisceau incident de 1 mA en fonction de l'énergie incidente. L'activité à saturation mesurée par Nozaki et Iwamoto est aussi présentée. La courbe bleu correspond à la réaction $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$ et les autres à $^{12}\text{C}(\beta\text{He},n)^{14}\text{O}$.

4.2.3. Discussion.

Au vu des taux de production calculés dans la partie précédente, le mécanisme réactionnel $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$ semble le plus prometteur pour un même nombre de particules incidentes. Ceci est dû au parcours dans la matière, plus important pour des protons à 33 MeV dans l'azote que pour de ^3He à 43,5 MeV dans le carbone. De plus l'intensité du faisceau de protons disponible est 5 fois supérieure à celle du faisceau d' ^3He . Cette réaction comporte toutefois de nombreux inconvénients. Toutes les cibles solides composées d'azote (BN, AlN...) s'oxydent fortement (B_2O_3 , Al_2O_3 ...) piégeant ainsi l' ^{14}O produit. Une cible de BN portée à haute température a été irradiée avec un faisceau de proton à Louvain-La-Neuve. La diffusion hors de la cible de l' ^{14}O n'a pas été observée (présentation de M. Loiselet lors de la réunion « EURISOL User Group » de mars 2007 [119]). La seule solution est alors d'utiliser une cible gazeuse comme cela est décrit dans la partie 4.1.1.2. Cette méthode paraît complexe et difficile à mettre en place dans la casemate de production de SPIRAL 2. Nous rappelons que la casemate de production est classée zone rouge ; aucune intervention humaine n'y est autorisée, toutes les manipulations doivent être faites par télémanipulateur. De plus, la conception

d'une cible d'azote gazeux à haute pression, dont les fenêtres d'entrée peuvent supporter un faisceau de protons de 5mA à 33 MeV, reste un développement technique à faire. L'étude d'un prototype a été menée par William Z. Gelbart (voir la présentation de D. Berkovits lors de la SPIRAL 2 Week 2007 [120]). A LBNL où les deux types de mécanismes réactionnels ont été testés, les intensités de faisceau obtenues avec une cible gazeuse d'azote sont inférieures à celle de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ (voir la partie 3.2.1).

La méthode utilisant une cible solide de graphite bombardée par un faisceau d'hélium est techniquement plus simple et a priori plus fiable. Les cibles de production en graphite sont couramment utilisées au GANIL sur SPIRAL 1. Ainsi leurs propriétés à haute température (diffusion, évaporation...) sont bien maîtrisées. Néanmoins, la puissance thermique (43,5 kW) du faisceau primaire est déposée dans une faible longueur de cible (parcours de 2 mm pour ^3He à 43,5 MeV dans du graphite de densité 1 g.cm^{-3}). Une étude thermique doit être menée afin de déterminer la géométrie d'une cible en mesure d'accepter cette puissance. Enfin, les calculs des taux de production à saturation effectués pour cette réaction conduisent à des valeurs non cohérentes. Le taux de production donné par Nozaki et Iwamoto [118] est inférieur d'un facteur 7,6 à celui calculé à partir des données de Singh [111]. Il convient de remesurer cette section efficace dans la gamme d'énergie utile. Ces deux études (mesure de la section efficace, étude thermique) sont cruciales pour pouvoir effectuer une estimation correcte du taux de production d' ^{14}O attendu sur SPIRAL 2.

4.3. Mesure de section efficace.

Nous avons vu précédemment que la section efficace de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ reste mal connue. Trois différents groupes de recherche ont effectué cette mesure pour une énergie allant jusqu'à 10 MeV [108-110]. La seule mesure de section efficace ayant été réalisée à plus haute énergie [111] n'est pas une mesure absolue ; elle est normalisée aux mesures à plus basse énergie d'Osgood *et al.* [110]. Cette mesure est en contradiction avec les activités à saturation d'une cible épaisse mesurées par Nozaki *et al.* [118] d'un facteur 7,6. Afin d'estimer plus précisément l'intensité du faisceau d'oxygène potentiellement délivrable, une nouvelle mesure de la section efficace est réalisée.

4.3.1. Dispositif expérimental.

L'expérience a eu lieu au NPI (Nuclear Physics Institute, Řež, Rép. Tchèque) [121] du 21 au 26 octobre 2009. Le but était de mesurer la section efficace de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ dans une gamme d'énergie située entre 40 et 0 MeV. Le cyclotron isochrone U-120M, délivre un faisceau d' $^3\text{He}^{2+}$ jusqu'à 38 MeV dans les différentes salles d'expériences. Un aimant d'analyse permet la mesure de

l'énergie du faisceau et limite sa dispersion en énergie. Deux séries de mesures correspondant à deux énergies du faisceau délivré par le cyclotron (38 et 24,5 MeV) ont été effectuées. Les énergies intermédiaires ont été atteintes en utilisant des feuilles d'aluminium (feuilles appelées dégradeur) pour diminuer l'énergie du faisceau. Ces feuilles sont disposées sur un rail permettant de changer rapidement l'épaisseur du dégradeur. Le schéma (Fig. 19) présente le dispositif mis en place pour l'irradiation des cibles. Les cibles irradiées sont constituées de trois disques de 1 cm de rayon, une fine feuille de mylar de 3 μm recouvre une fine feuille de carbone flexible de 75 μm . A l'arrière, une feuille d'aluminium de 10 μm est disposée. L'enveloppe, ainsi réalisée autour de la feuille de carbone, permet d'éviter la sortie de la cible de l'oxygène produit sous la forme volatile C^{14}O . La majorité des produits de réaction est stoppée dans la cible de carbone de 75 μm . La feuille d'aluminium placée à l'arrière, stoppe les produits de réaction qui ont suffisamment d'énergie de recul pour sortir de la cible de carbone.

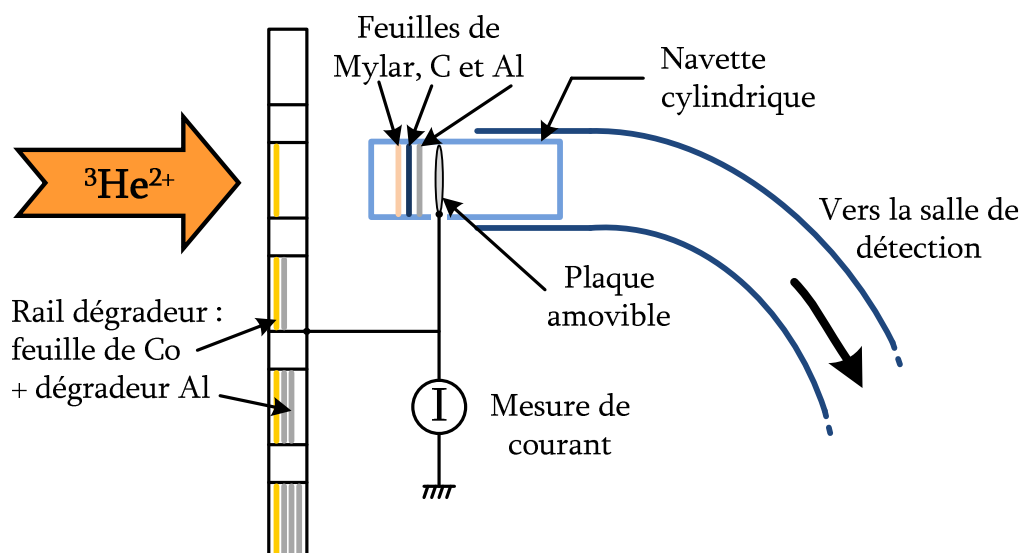


Fig. 19_ Schéma de la station d'irradiation du dispositif expérimental.

La mesure de l'intensité du faisceau irradiant la cible est un point essentiel pour la normalisation de la section efficace. Une plaque placée à l'arrière de la cible stoppe le faisceau d'hélium. Le courant récolté sur cette plaque ainsi que sur le rail dégradeur est mesuré en temps réel. L'irradiation simultanée de feuilles d'aluminium et de cobalt permet de vérifier cette mesure :

- La section efficace $^{27}\text{Al}(^3\text{He}, 2p)^{28}\text{Al}$ étant connue, la mesure du taux d' ^{28}Al produit dans les feuilles d'aluminium de 10 μm d'épaisseur permet de calculer le nombre d' ^3He reçu par la cible de carbone au cours de chaque irradiation. Ces feuilles sont placées dans chaque assemblage cible à l'arrière de la cible de carbone. Il ne faut pas confondre ces feuilles avec les

feuilles d'aluminium placées sur le rail dégradeur et qui servent à dégrader l'énergie du faisceau d' ^3He .

- De plus des feuilles de cobalt de 3 μm d'épaisseur sont placées sur le rail dégradeur d'énergie en amont des feuilles d'aluminium. La section efficace de réaction avec le faisceau d' ^3He étant bien connue, leur activation sert aussi à vérifier le nombre d' ^3He envoyé sur la cible de carbone. La pureté des feuilles utilisées est garantie à 99,9%, les autres caractéristiques peuvent être trouvées sur le site du fournisseur [122].

La durée des irradiations est fixée à 200 s, soit environ 3 fois la durée de vie de l' ^{14}O (70 s), afin d'atteindre l'activité à saturation. L'assemblage des trois feuilles constituant la cible est installé dans une navette (cylindre plastique) permettant le transport rapide de la cible irradiée, jusqu'à une salle de mesure bas bruit de fond via un tube pneumatique (30 m parcourus en 3 s).

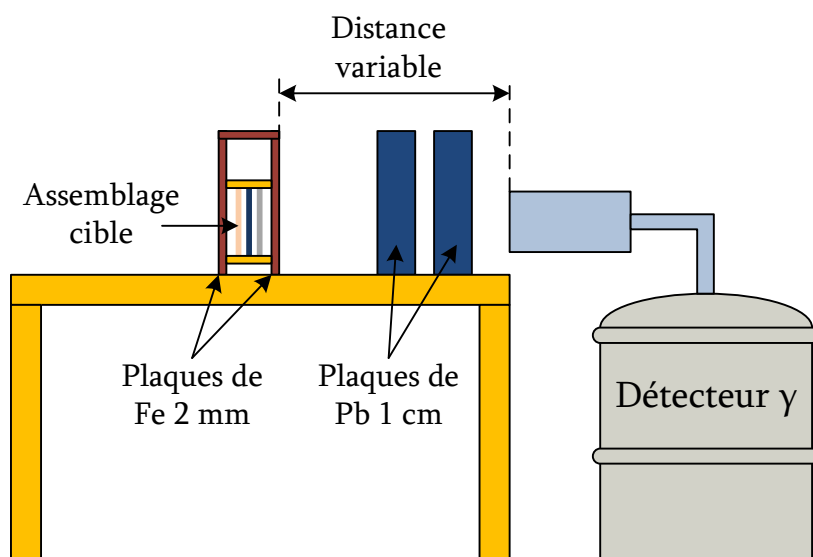


Fig. 20 _ Schéma du dispositif mis en place dans la salle de mesure bas bruit de fond.

Le schéma (Fig. 20) décrit le dispositif mis en place dans la salle de mesure bas bruit de fond. L'assemblage cible est placé dans l'axe d'un détecteur de rayonnement γ entre deux plaques de fer d'épaisseur 2 mm pour stopper les positrons pouvant s'annihiler loin de l'échantillon. Un blindage de plomb de 2 cm est disposé entre la cible et le détecteur afin de limiter le rayonnement de 511 keV reçu par le détecteur. Cette transition gamma est essentiellement due à la radioactivité du ^{11}C produit par les réactions $^{12}\text{C}(^3\text{He},\alpha)^{11}\text{C}$ (de l'ordre de 350 mb à 9 MeV [109]) et $^{12}\text{C}(^3\text{He},d)^{13}\text{N}$ (de l'ordre 70 mb à 9 MeV). La distance entre la cible et le détecteur est variable et permet de limiter le taux de comptage du détecteur. Le détecteur γ utilisé est une jonction germanium (Model GEM 50 SH-GEM 42P11710A, Ortec), polarisée à 3000 V. Chaque comptage dure environ 300

s avant d'effectuer une nouvelle irradiation. Le comptage des feuilles de cobalt peut avoir lieu plusieurs semaines après l'irradiation car les noyaux produits présentent de longues durées de vie. Le taux de comptage étant alors plus faible, ces acquisitions sont effectuées avec le même détecteur mais avec un meilleur blindage : le détecteur est placé sous un château de plomb. La liste des isotopes et des rayonnements γ associés qui ont été mesurés est présentée dans le tableau 5. La raie à 1238 keV du ^{56}Co n'est pas utilisée car polluée par une raie du bruit de fond de la salle.

Feuille	Isotope	Période	E_γ (keV)	I_γ (%)	Réactions	Q (MeV)
^{12}C	^{14}O	70,606 s	2312,593	99,388	$^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$	1,4
	^{10}C	19,255 s	718,3	98,53	$^{12}\text{C}(^3\text{He},\alpha+n)^{10}\text{C}$	-11,3
					$^{12}\text{C}(^3\text{He},^3\text{He}+2n)^{10}\text{C}$	-31,8
					$^{12}\text{C}(^3\text{He},2d+n)^{10}\text{C}$	-35,1
					$^{12}\text{C}(^3\text{He},2p+3n)^{10}\text{C}$	-39,6
^{27}Al	^{28}Al	2,2414 m	1778,969	100	$^{27}\text{Al}(^3\text{He},2p)^{28}\text{Al}$	$7,0 \times 10^{-3}$
^{59}Co	^{60}Cu	23,7 m	826,06	21,7	$^{59}\text{Co}(^3\text{He},2n)^{60}\text{Cu}$	-5,0
			1791,6	45,4		
	^{61}Cu	3,333 h	282,956	12,2	$^{59}\text{Co}(^3\text{He},n)^{61}\text{Cu}$	6,6
			656,008	10,77		
	^{56}Co	77,27 d	846,771	100	$^{59}\text{Co}(^3\text{He},2n+\alpha)^{56}\text{Co}$	-9,8
			1037,840	13,99	$^{59}\text{Co}(^3\text{He},2t)^{56}\text{Co}$	-21,2
	^{57}Co	271,79 d	122,0614	85,60	$^{59}\text{Co}(^3\text{He},\alpha+n)^{57}\text{Co}$	1,5
			136,4743	10,68	$^{59}\text{Co}(^3\text{He},d+t)^{57}\text{Co}$	-16,0
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},n+p+t)^{57}\text{Co}$	-18,3
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},^3\text{He}+2n)^{57}\text{Co}$	-19,0
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},n+2d)^{57}\text{Co}$	-22,3
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},2n+p+d)^{57}\text{Co}$	-24,5
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},\alpha)^{58}\text{Co}$	10,1
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},p+t)^{58}\text{Co}$	-9,6
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},^3\text{He}+n)^{58}\text{Co}$	-10,4
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},2d)^{58}\text{Co}$	-13,7
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},n+p+d)^{58}\text{Co}$	-15,9
					$^{59}\text{Co}(^3\text{He},2n+2p)^{58}\text{Co}$	-18,2
	$^{58\text{m}+g}\text{Co}$	70,86 d	810,775	99		

tableau 5 _ Liste des rayonnements γ utilisés, de leurs isotopes d'origine, des réactions à partir desquelles ils sont produits et des seuils de réactions. Données extraites de NNDC [123].

4.3.2. Calcul de l'expression de la section efficace.

Au cours de l'irradiation d'une des feuilles de cobalt, de carbone ou d'aluminium contenant N_f (atomes.cm⁻²) par un faisceau primaire de flux Φ (pps), le taux de production T_{prod} (pps) dans une feuille mince pour un isotope est calculé à l'aide de la formule (3). σ (cm²) représente la section efficace de production de l'isotope concerné.

$$T_{prod}(pps) = \sigma \cdot \Phi \cdot N_f \quad (3)$$

Le cycle adopté lors de nos mesures est décrit sur le schéma ci-dessous (Fig. 21). Le début de l'irradiation est choisi comme référence temporelle pour chaque mesure. L'irradiation dure pendant t_{irr} . Au cours de l'irradiation les fluctuations de flux du faisceau primaire $\Phi(t)$ sont enregistrées en fonction du temps. La feuille d'intérêt est ensuite placée devant le détecteur et la spectrométrie a lieu durant t_{acq} .

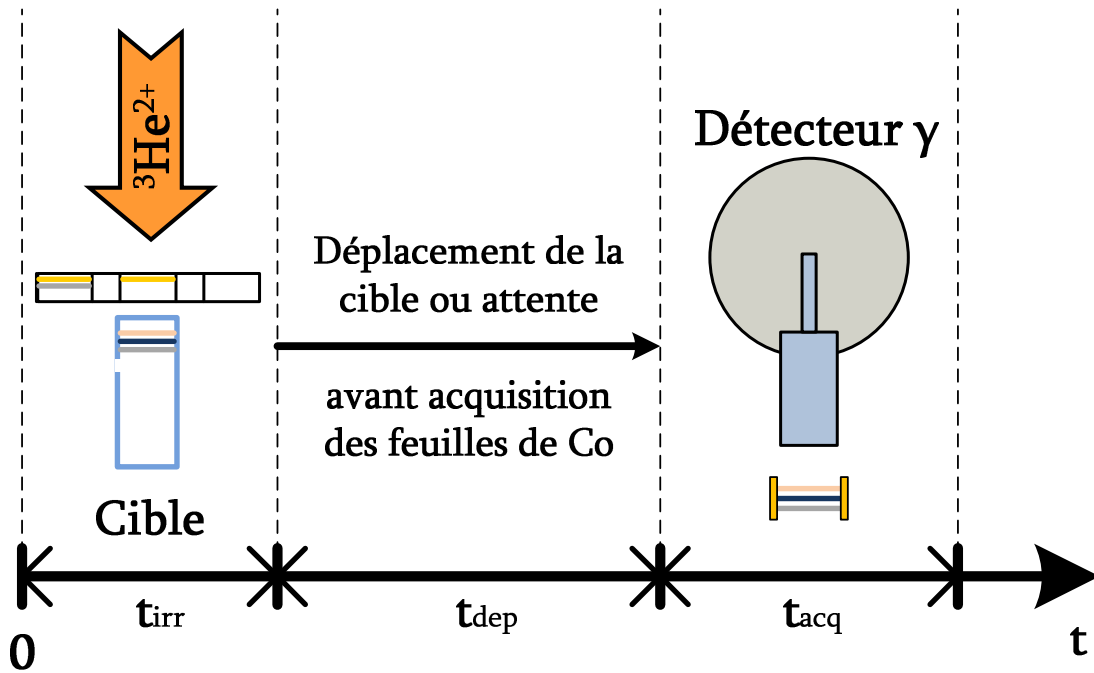


Fig. 21 _ Schéma présentant le déroulement d'un cycle d'acquisition.

La variation dans la cible du nombre d'atomes de l'isotope considéré $N(t)$ est régit par l'équation différentielle (4) (sa constante de désintégration est notée λ) :

$$\frac{dN(t)}{dt} = \sigma \cdot \Phi(t) \cdot N_f - \lambda N(t) \quad (4)$$

Il est alors possible de déterminer $N(t)$ à partir de la condition initiale suivante : $N(0) = 0$ et sachant que $\Phi(t) = 0$ pour $t > t_{irr}$, on obtient :

$$N(t) = \sigma \cdot N_f \cdot e^{-\lambda t} \cdot \int_0^{t_{irr}} \Phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} \cdot d\tau \quad (5)$$

Au cours de l'acquisition (entre $t_{irr}+t_{dep}$ et $t_{irr}+t_{dep}+t_{acq}$), le nombre total de rayonnements gammas d'une raie N_γ issues de la désintégration de l'isotope et récoltés par le détecteur est exprimé dans la formule (6).

$$N_\gamma = \overline{TM} \cdot I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot \lambda \cdot \int_{t_{irr}+t_{dep}}^{t_{irr}+t_{dep}+t_{acq}} N(\tau) \cdot d\tau \quad (6)$$

Avec \overline{TM} le facteur d'acceptation de la chaîne d'acquisition dû au temps mort, I_γ le rapport d'embranchement de cette raie (voir le tableau 5), et ε_γ l'efficacité du détecteur à l'énergie correspondante du rayonnement.

$$N_\gamma = \overline{TM} \cdot I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot \sigma \cdot N_f \cdot e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})} \cdot (1 - e^{-\lambda t_{acq}}) \cdot \int_0^{t_{irr}} \Phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} \cdot d\tau \quad (7)$$

La section efficace de production recherchée découle alors simplement de la relation précédente :

$$\sigma = \frac{N_\gamma}{\overline{TM} \cdot I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot N_f \cdot e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})} \cdot (1 - e^{-\lambda t_{acq}}) \cdot \int_0^{t_{irr}} \Phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} \cdot d\tau} \quad (8)$$

4.3.3. Calcul d'erreur et caractérisation de chacun des termes.

Dans cette partie chaque terme de l'expression de la section efficace (8) est explicité. Ces termes sont reliés aux grandeurs mesurées au cours de l'expérience. L'erreur commise sur la mesure de la section efficace est exprimée dans la formule suivante (9). L'erreur absolue sur une grandeur X sera notée δX et l'erreur relative $\Delta X = \delta X/X$. La contribution à l'erreur totale de chacun de ces termes est présentée.

$$\begin{aligned} (\Delta \sigma)^2 &= (\Delta N_\gamma)^2 + (\Delta \overline{TM})^2 + (\Delta I_\gamma)^2 + (\Delta \varepsilon_\gamma)^2 + \\ &+ (\Delta N_f)^2 + \left(\Delta \left(e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})} (1 - e^{-\lambda t_{acq}}) \right) \right)^2 + \left(\Delta \int_0^{t_{irr}} \Phi(\tau) \cdot e^{\lambda \tau} \cdot d\tau \right)^2 \end{aligned} \quad (9)$$

4.3.3.1. Nombre de rayonnements gammas.

Le nombre total de rayonnements gammas d'un pic N_γ est déterminé en intégrant le nombre d'évènements survenus dans le pic d'intérêt N_{pic} durant l'acquisition. Comme l'explique la formule (10), il faut soustraire à N_{pic} le nombre d'évènements dus au bruit de fond du spectre. Il est estimé en intégrant deux zones de part et d'autre du pic d'intérêt. Pour chaque zone les notations suivantes sont introduites : N_i nombre d'évènements dans la zone, C_i canal central de la zone et n_i largeur de la zone. Le fond est essentiellement dû à l'effet Compton (absorption partielle de l'énergie des transitions) sur les transitions gammas provenant d'autres voies réactionnelles et de la radioactivité ambiante de la salle.

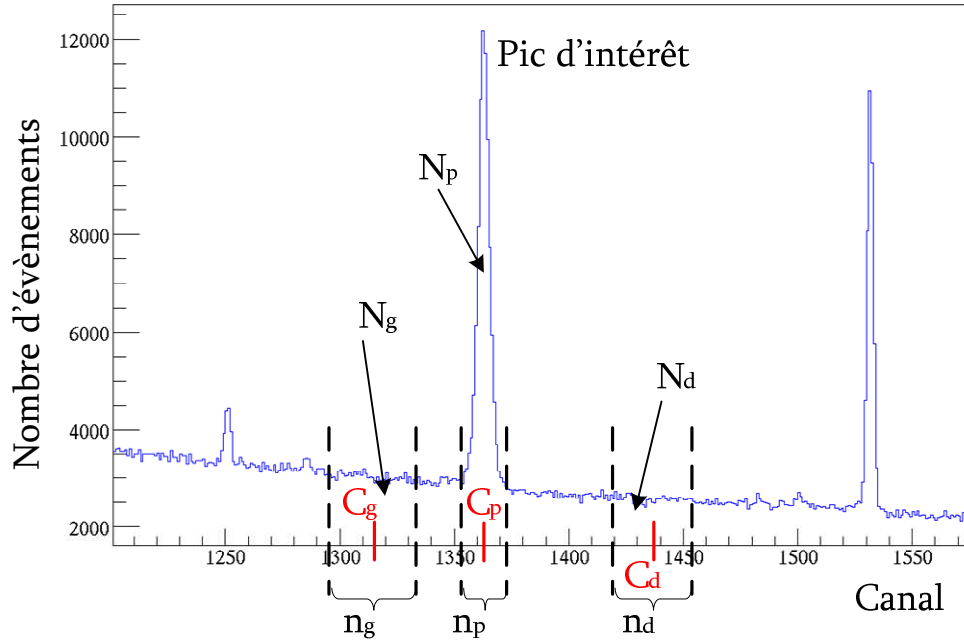


Fig. 22 _ Exemple de spectre obtenu, les limites définissant les nombres d'évènements dans le fond du spectre et dans le pic apparaissent.

$$N_\gamma = N_{pic} - \left(\frac{C_d - C_p}{C_d - C_g} \cdot \frac{n_p}{n_g} \right) \cdot N_g - \left(\frac{C_p - C_g}{C_d - C_g} \cdot \frac{n_p}{n_d} \right) \cdot N_d \quad (10)$$

L'erreur sur le nombre de rayonnements γ détectés est d'origine statistique. Cette erreur dépend fortement de l'intensité de la raie γ analysée, elle s'exprime de la manière suivante (11). L'erreur sur chacun des termes est la racine du nombre d'évènements : $\delta N_i = \sqrt{N_i}$.

$$(\delta N_\gamma)^2 = N_{Pic} + \left(\frac{C_3 - C_2}{2} \right)^2 \cdot \left(\frac{N_{Bdf-G}}{(C_2 - C_1)^2} + \frac{N_{Bdf-D}}{(C_4 - C_3)^2} \right) \quad (11)$$

4.3.3.2. Facteur d'acceptation.

Le facteur d'acceptation \overline{TM} est estimé à partir des impulsions d'un générateur injectées dans le préamplificateur de la chaîne d'acquisition. Le nombre d'impulsions $N_{géné}$ comptabilisées dans le spectre est comparé à celui délivré par le générateur de fréquence f pendant la durée du comptage t_{acq} .

$$\overline{TM} = \frac{N_{géné}}{f \cdot t_{acq}} \quad (12)$$

L'erreur effectuée sur ce terme est liée à l'erreur commise sur la détermination de la durée de l'acquisition et du nombre d'événements du générateur d'impulsions. L'équation (13) présente cette relation. L'erreur sur la durée de l'acquisition est liée au logiciel d'acquisition qui donne cette durée arrondie à la seconde, par conséquent $\delta(t_{acq})$ est considérée égale à 0,5 s. Pour nos acquisitions qui durent au minimum 60 s, l'erreur est donc inférieure au pourcent. L'équation (14) montre que l'erreur sur $N_{géné}$ est due à l'estimation du bruit de fond. Cette erreur est négligeable car le pic du générateur comporte au moins 4000 événements sur un bruit de fond très faible. L'erreur globale commise sur le temps mort a toujours été inférieure à 1%. Elle peut être considérée constante à 1%.

$$(\Delta \overline{TM})^2 = (\Delta t_{acq})^2 + (\Delta N_{géné})^2 \quad (13)$$

$$(\delta N_{géné})^2 = \left(\frac{C_3 - C_2}{2} \right)^2 \cdot \left(\frac{N_{Bdf-G}}{(C_2 - C_1)^2} + \frac{N_{Bdf-D}}{(C_4 - C_3)^2} \right) \quad (14)$$

4.3.3.3. Rapport d'embranchement.

Le rapport d'embranchement I_γ utilisé et son erreur proviennent de la base de données nucléaire tabulée NNDC [123]. L'erreur est la plupart du temps négligeable sauf pour quelques rayonnements : le rapport d'embranchement du rayonnement à 1791,6 keV du ^{60}Cu présente 5% d'erreur, et ceux des rayonnements du ^{61}Cu aux énergies 283 et 656 keV présentent respectivement 2,46% et 1,67% d'erreur.

4.3.3.4. Efficacité du détecteur gamma.

L'efficacité du détecteur de rayonnement gamma est calibrée à l'aide de sources d'euprium 152 et de niobium 90. Ces calibrations ont été réalisées dans les mêmes positions et avec le même blindage que lors de l'acquisition des feuilles irradiées. Les mesures d'efficacité obtenues ε_γ sont reproduites par la fonction décrite ci-dessous (15) en ajustant ses paramètres. La forme quadratique reproduit assez bien l'efficacité du détecteur Ge. Un terme cubique est ajouté pour reproduire la forte atténuation due au blindage de plomb. Un premier ajustement est effectué pour des énergies supérieures à E_0 . Les paramètres a et b déduits de cet ajustement sont utilisés sans modification dans un second ajustement pour les énergies inférieures à E_0 . L'énergie de transition entre les deux ajustements E_0 est choisie par itérations de la procédure d'ajustement de manière à minimiser l'écart entre les points de calibration et la fonction. Le graphique (Fig. 23) présente un exemple d'ajustement réalisé sur les points de calibration. L'énergie de transition E_0 est choisie à 1500 keV. On constate une importante atténuation de l'efficacité du détecteur à basse énergie. Cet effet est dû au blindage en plomb ajouté afin d'atténuer le rayonnement d'annihilation à 511 keV.

$$\begin{aligned} \log(\varepsilon_\gamma) &= a + b \cdot \log(E) && \text{pour } E > E_0 \\ \log(\varepsilon_\gamma) &= a + b \cdot \log(E) + c \cdot \log(E)^2 + d \cdot \log(E)^3 && \text{pour } E < E_0 \end{aligned} \quad (15)$$

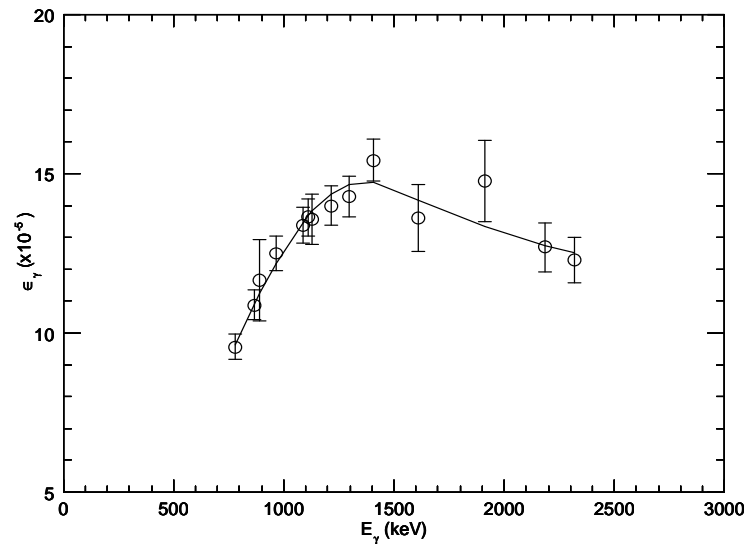


Fig. 23 _ Exemple de courbe d'étalonnage du détecteur γ réalisé avec une source de ^{152}Eu et de ^{90}Nb . Dans cet exemple, les paramètres de l'ajustement (15) sont : $a = -8,84$; $b = -0,34$; $c = -2,10$; $d = -0,94$.

L'erreur sur l'efficacité du détecteur est déterminée à partir de l'ajustement effectué sur les points de calibration. La matrice de covariance de cet ajustement permet d'estimer l'erreur sur l'efficacité $\delta(\varepsilon_\gamma)$. Les ajustements et le calcul des erreurs sur l'efficacité sont effectués à l'aide du logiciel e^xtrema [124]. Cette estimation prend en compte les barres d'erreurs individuelles de chaque point de calibration. Cette erreur doit systématiquement être prise en compte puisque toujours supérieure à 5%.

4.3.3.5. Nombre d'atomes cible.

La masse de chaque feuille de carbone et d'aluminium m_f (g) a été mesurée. Une feuille est un disque d'épaisseur l (cm), de rayon r (1 cm) et de volume V (cm³). La masse molaire M (g.mol⁻¹) et le nombre d'Avogadro N_a (6,022×10²³ mol⁻¹) interviennent dans la formule (16) donnant le nombre d'atomes cible N_f (cm⁻²).

$$N_f = \frac{m_f}{M} \cdot N_a \cdot \frac{l}{V} = \frac{m_f}{M} \cdot N_a \cdot \frac{1}{\pi \cdot r^2} \quad (16)$$

Pour les feuilles de cobalt, l'épaisseur certifiée par le fournisseur est prise comme référence. La masse volumique du cobalt ρ est prise égale à 8,9 g.cm⁻³.

$$N_f = \frac{\rho \cdot N_a \cdot l}{M} \quad (17)$$

L'erreur sur le nombre de noyaux dans la cible est calculée à partir des formules (16) et (17). Pour les feuilles de carbone et d'aluminium, pour lesquelles une pesée est réalisée, l'erreur est exprimée dans la formule (18). L'erreur sur la pesée des disques est donnée par les caractéristiques de la balance $\delta m_f = 0,1$ mg. Les cibles de carbone pèsent en moyenne 24 mg (soit environ 0,5% d'erreur) et les cibles d'aluminium 9,6 mg (soit environ 1% d'erreur). Les disques sont découpés à l'aide d'un emporte pièce ; δr est estimée inférieure à 0,2 mm pour un rayon de 10 mm. L'erreur relative est donc d'environ 2%, et l'erreur relative sur la détermination du nombre d'atomes est d'environ 3%.

$$(\Delta N_f)^2 = (\Delta m_f)^2 + 2 \cdot (\Delta r)^2 \quad (18)$$

Pour les feuilles de cobalt, c'est l'erreur sur l'épaisseur de la feuille qu'il convient de prendre en compte. Le fournisseur indique une incertitude de $\pm 25\%$ sur celle-ci. Il est probable que toutes nos feuilles de cobalt proviennent d'une même plus grande feuille. L'épaisseur de nos différentes feuilles sera proche mais pourra présenter une déviation commune de l'ordre de $\pm 25\%$ par rapport à 3 μ m.

Il n'a pas été possible de peser ces feuilles en raison de leur fragilité avant l'irradiation. Après la mesure, trois de ces feuilles ont pu être pesées, l'incertitude sur l'épaisseur de la feuille est ainsi réduite $\pm 10\%$.

4.3.3.6. Terme de décroissance

Le terme lié à la décroissance (19) des isotopes entre l'irradiation des feuilles et le comptage est simplement calculé à partir de la constante de désintégration de l'isotope considéré λ , de la durée entre le début de l'irradiation et le début du comptage $t_{irr}+t_{dep}$ et de la durée du comptage t_{acq} .

$$e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})}(1-e^{-\lambda t_{acq}}) \quad (19)$$

Le calcul de l'erreur sur ce terme est présenté ci-dessous (20). Nous avons vu précédemment que l'erreur commise sur la durée de l'acquisition $\delta(t_{acq})$ est estimée à 0,5 s. L'erreur $\delta(t_{irr}+t_{dep})$ est liée à l'erreur sur la détermination du début de l'irradiation et du début du comptage. Elle est estimée à 1 s. La formule (20) montre que l'erreur sur le terme de décroissance augmente avec la constante de désintégration de l'isotope. Pour l'analyse des feuilles de carbone et d'aluminium, c'est l' ^{14}O qui présente la plus grande constante de désintégration et l'erreur commise est de l'ordre du pourcent. Pour l'analyse des feuilles de cobalt, quel que soit l'isotope, l'erreur sur ce terme est négligée car inférieure à $5 \times 10^{-2} \%$.

$$\begin{aligned} & \left(\delta \left(e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})} (1-e^{-\lambda t_{acq}}) \right) \right)^2 \\ &= \left(\delta_{acq} \cdot \frac{d \left(e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})} (1-e^{-\lambda t_{acq}}) \right)}{dt_{acq}} \right)^2 + \left(\delta(t_{irr}+t_{dep}) \cdot \frac{d \left(e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})} (1-e^{-\lambda t_{acq}}) \right)}{d(t_{irr}+t_{dep})} \right)^2 \quad (20) \\ & \Delta \left(e^{-\lambda(t_{irr}+t_{dep})} (1-e^{-\lambda t_{acq}}) \right) = \lambda \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta_{acq} \cdot e^{-\lambda t_{acq}}}{1-e^{-\lambda t_{acq}}} \right)^2 + \delta(t_{irr}+t_{dep})^2} \end{aligned}$$

4.3.3.7. Flux du faisceau primaire.

Au cours de l'irradiation, le courant I (A) déposé par le faisceau d' $^3\text{He}^{2+}$ sur le rail dégradeur et sur la plaque de mesure est enregistré. Il est relié au flux Φ (pps) par la relation suivante :

$$\Phi = \frac{I}{2 \cdot e} \quad (21)$$

Le flux est divisé par deux pour tenir compte de l'état de charge du faisceau d'hélium. e désigne la charge élémentaire. Un calcul réalisé à l'aide du code

LISE++ [125] montre que l'état de charge du faisceau reste identique quand il traverse les différentes feuilles.

L'erreur commise sur le dernier terme de la formule (8) lié à l'intensité du faisceau primaire, sera assimilée à l'erreur sur la mesure de courant donnée par l'appareil (5%). Cette estimation constitue une majoration de l'erreur réellement commise sur ce terme.

4.3.4. Regroupement de plusieurs mesures.

Après chaque irradiation, le comptage est effectué en plusieurs tranches (n sous-comptages) de 60 s. Les valeurs de section efficace obtenues pour chacun de ces comptages peuvent être regroupées.

Pour l'analyse des feuilles de cobalt, la section efficace de production de certains isotopes est déterminée à partir de deux rayonnements γ . De la même manière, les valeurs peuvent être regroupées.

Pour les isotopes produits dans les feuilles d'aluminium et de carbone, l'analyse est effectuée sur un seul rayonnement γ . Par contre, pour chaque énergie du faisceau primaire, l'assemblage cible subit deux irradiations successives. Les valeurs de la section efficace déduites à partir de ces deux irradiations peuvent aussi être regroupées.

Le détail des calculs liés à ces regroupements est présenté dans l'annexe 1.2.

4.3.5. Résultats.

4.3.5.1. Section efficace de production du ^{10}C .

La mesure de la section efficace de production du ^{10}C est un des résultats parallèles à la mesure de la fonction d'excitation $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$. Dans la gamme d'énergie utilisée, le processus contribuant principalement à la production de ^{10}C est $^{12}\text{C}(^3\text{He},\alpha+n)$ (voir le tableau 5 pour les valeurs de seuil de réaction). Il n'existe pas à notre connaissance dans la littérature de référence présentant une telle mesure. La comparaison de nos valeurs à celles de la base de données TENDL-09 [112] est présentée sur le graphique ci-dessous (Fig. 24). La fonction d'excitation que nous avons mesurée commence à augmenter aux alentours de 20 MeV pour atteindre 12 mb entre 25 et 35 MeV.

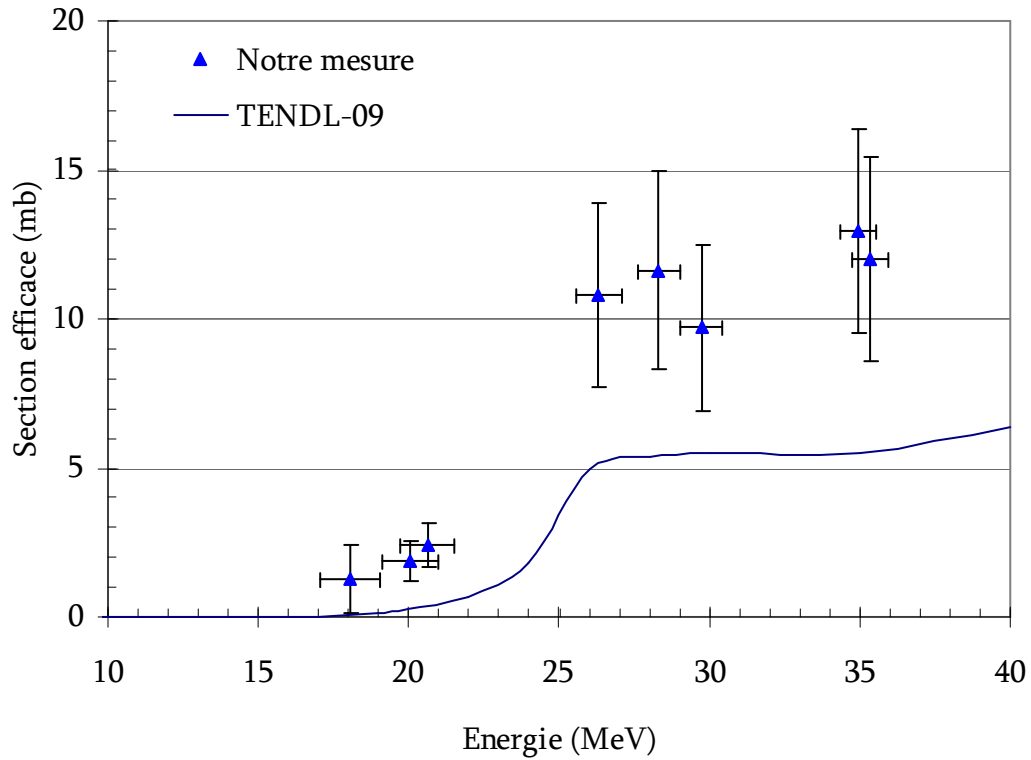


Fig. 24 _Mesure de la section efficace de production du ^{10}C en fonction de l'énergie comparées aux valeurs données par la base de données TENDL-09. Les barres horizontales représentent la dégradation de l'énergie du faisceau primaire dans la cible.

4.3.5.2. Section efficace de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$.

Les sections efficaces de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ mesurées sont présentées dans le tableau 6. Les valeurs de sections efficaces de production du ^{10}C présentées dans le paragraphe précédent y sont ajoutées. Les valeurs issues de chaque comptage ne sont pas présentées car elles sont toutes cohérentes (l'écart entre ces valeurs était dans tous les cas inférieur à l'erreur sur la mesure). Le tableau présente le regroupement de ces valeurs, noté σ , pour chaque irradiation. Les valeurs mesurées pour deux irradiations successives à la même énergie sont cohérentes. Elles sont regroupées en une seule valeur σ . L'énergie du faisceau primaire qui est donnée correspond à l'énergie moyenne dans la cible. La perte en énergie totale dans la cible de carbone, d'épaisseur $75\text{ }\mu\text{m}$ et de densité $1,1\text{ g.cm}^{-3}$, est notée ΔE . La perte d'énergie est calculée à l'aide du code LISE++ [125] utilisant le modèle à basse énergie de J. F. Ziegler [126]. Le calcul des erreurs est explicité dans les parties 4.3.3 et 4.3.4. Une mesure avec une cible de carbone suffisamment épaisse pour stopper entièrement le faisceau primaire est faite à l'énergie maximale (36 MeV). Cette mesure donne directement un taux de production en

cible épaisse. La section efficace intégrée sur toute la gamme d'énergie peut alors être calculée. Elle est présentée à la dernière ligne de la table ci-dessous.

Emoy (MeV)	ΔE (MeV)	$^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$		$^{12}\text{C}(^3\text{He},-)^{10}\text{C}$	
		σ (mb)	σ_r (mb)	σ (mb)	σ_r (mb)
7,2	4,1	19 ± 2	18 ± 2	-	-
		17 ± 2		-	
14,4	2,4	$7,2 \pm 0,7$	$7,3 \pm 0,7$	-	-
		$7,4 \pm 0,7$		-	
18,0	2,0	$5,6 \pm 0,6$	$5,5 \pm 0,6$	-	1 ± 1
		$5,4 \pm 0,6$		1 ± 1	
20,0	1,9	$3,9 \pm 0,4$	$3,8 \pm 0,4$	2 ± 1	$1,9 \pm 0,7$
		$3,8 \pm 0,4$		$1,8 \pm 0,7$	
20,6	1,8	$3,8 \pm 0,4$	$3,8 \pm 0,4$	$2,2 \pm 0,7$	$2,4 \pm 0,7$
		$3,8 \pm 0,4$		3 ± 1	
26,3	1,5	$3,0 \pm 0,3$	$3,0 \pm 0,3$	11 ± 3	11 ± 3
		$3,1 \pm 0,3$		11 ± 3	
28,3	1,4	$2,5 \pm 0,3$	$2,5 \pm 0,3$	11 ± 3	12 ± 3
		$2,5 \pm 0,3$		12 ± 3	
29,7	1,3	$1,8 \pm 0,2$	$1,8 \pm 0,2$	10 ± 3	10 ± 3
		$1,8 \pm 0,2$		9 ± 3	
34,9	1,2	$1,6 \pm 0,2$	$1,7 \pm 0,2$	$13,2 \pm 4$	13 ± 3
		$1,7 \pm 0,2$		$12,7 \pm 4$	
35,3	1,2	$1,3 \pm 0,2$	$1,3 \pm 0,2$	13 ± 4	12 ± 3
		$1,4 \pm 0,2$		11 ± 3	
18	18	$2,9 \pm 0,3$	$2,9 \pm 0,3$	-	-
		$2,9 \pm 0,3$		-	

tableau 6_ Sections efficaces de production mesurées pour le ^{10}C et ^{14}O .

Le graphique (Fig. 25) présente une comparaison de nos mesures avec les valeurs trouvées dans la littérature (Fig. 16). Notre seule mesure à basse énergie (7 MeV) présente une dispersion en énergie importante (4 MeV). Elle ne permet pas de régler le désaccord observé entre les données de Cirilov *et al.* [108], Hahn et Ricci [109] et Osgood *et al.* [110]. A plus haute énergie, nos valeurs sont inférieures à celle de Singh [111] d'un facteur 4 (rappelons que les valeurs de Singh sont normalisées à celle d'Osgood).

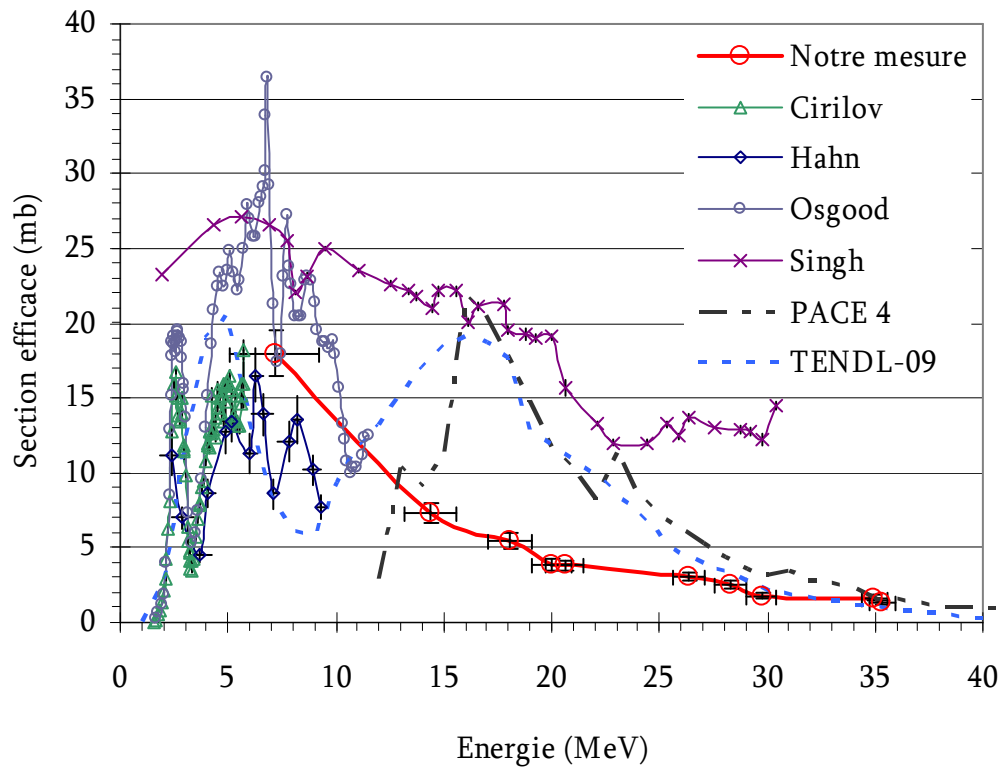


Fig. 25 _ Comparaison de notre mesure de section efficace aux données existantes pour la réaction $^{12}\text{C}(\beta\text{He},n)^{14}\text{O}$. Les barres horizontales représentent la dégradation de l'énergie du faisceau primaire dans la cible.

A partir de nos mesures, il est possible de calculer le taux de production dans une cible épaisse. La démarche utilisée est identique à celle de la partie 4.2.2. Pour effectuer le calcul avec une cible épaisse, un point est ajouté à basse énergie. Ce point permet de définir la forme de la fonction d'excitation pour des énergies inférieures à 7 MeV et d'effectuer une meilleure interpolation de spline. La valeur du seuil de réaction est calculée à 1,43 MeV à partir de NNDC [123], le point supplémentaire est donc placé à cette énergie avec une section efficace nulle. Le graphique (Fig. 26) présente une comparaison entre nos valeurs et celles qui sont présentées sur le graphique (Fig. 18). Le taux de production calculé à 30 MeV est de 2×10^{11} pps soit un facteur 2,85 inférieur à la valeur calculée à partir de Singh [111] et un facteur 2,67 supérieur à celle de Nozaki et Iwamoto [118].

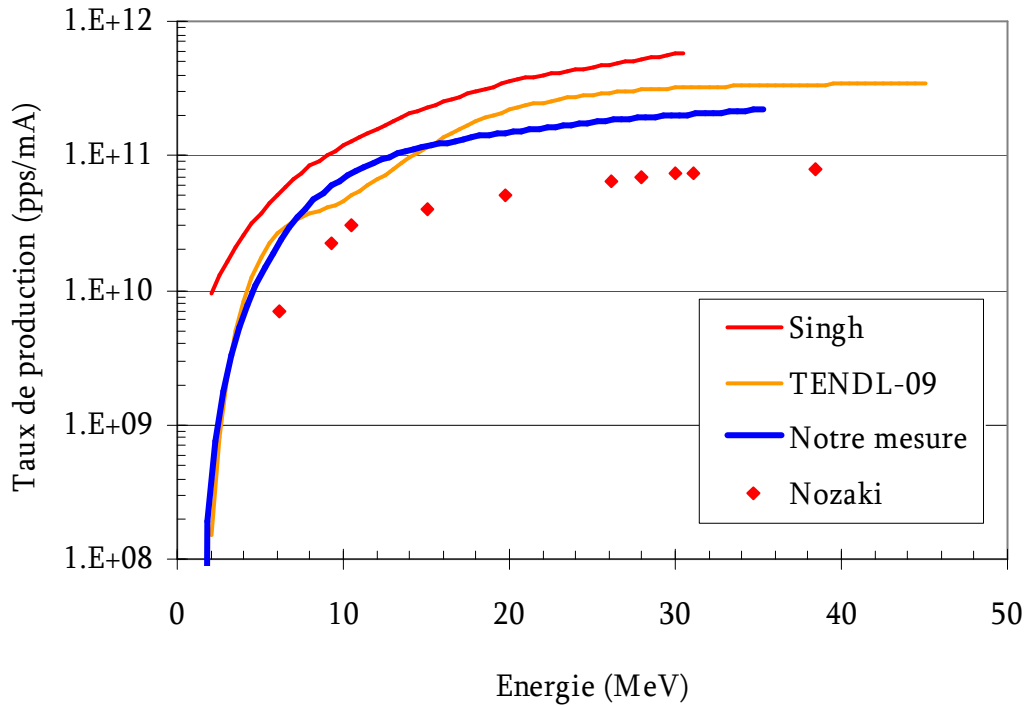


Fig. 26 _ Comparaison des taux de production à saturation dans une cible épaisse calculés à partir de nos mesures, de la littérature et de bases de données. Noz-81 donne des points intégrés expérimentaux.

4.3.5.3. Vérification de la normalisation par la réaction $^{27}\text{Al}(^3\text{He},2p)^{28}\text{Al}$.

Pour chaque cible, une feuille d'aluminium de 11 μm a été placée derrière le disque de carbone (voir la description du dispositif expérimental 4.3.1). Sa fonction première est de stopper les ^{14}O ayant suffisamment d'énergie de recul pour sortir de la cible de carbone. Elle permet aussi de vérifier la mesure de l'intensité du faisceau d' ^3He puisque la section efficace $^{27}\text{Al}(^3\text{He},2p)^{28}\text{Al}$ a déjà été mesurée par Frantsov *et al.* [127]. Nos mesures de sections efficaces sont présentées dans le tableau 7. L'énergie moyenne du faisceau primaire et sa perte en énergie dans la cible sont calculées de la même manière que dans la partie 4.3.5.2. La feuille d'aluminium constitue le dernier disque de l'assemblage cible. Une partie des ^{28}Al produits possède suffisamment d'énergie de recul pour s'échapper du disque d'aluminium. Cette quantité notée taux de sortie dans le tableau 7 est estimée à l'aide de l'utilitaire « ISOL Catcher » [128] du code LISE++. Les valeurs de sections efficaces présentées dans la table sont corrigées du taux de sortie. Les valeurs mesurées pour deux irradiations successives à la même énergie sont données. Elles diffèrent dans tous les cas d'une valeur inférieure à la barre d'erreur.

Emoy (MeV)	ΔE (MeV)	Taux de sortie (%)	σ (mb)	σ_r (mb)
4,2	1,7	0	24 ± 2 23 ± 2	23 ± 2
12,8	0,8	12,1	184 ± 15 187 ± 15	186 ± 15
16,7	0,7	15,2	274 ± 22 255 ± 42	265 ± 22
18,8	0,6	15,6	217 ± 18 224 ± 18	221 ± 18
19,4	0,6	16,0	222 ± 18 232 ± 19	227 ± 18
25,3	0,5	19,5	161 ± 14 158 ± 13	160 ± 13
27,4	0,5	20,1	131 ± 11 132 ± 11	131 ± 11
28,8	0,4	20,6	121 ± 10 120 ± 10	120 ± 10
34,1	0,4	23,0	97 ± 8 100 ± 8	98 ± 8
34,6	0,4	23,5	96 ± 8 95 ± 8 98 ± 8	96 ± 8

tableau 7 _ Valeurs expérimentales de la section efficace de la réaction $^{27}\text{Al}(\beta\text{He},2p)^{28}\text{Al}$ mesurées dans ce travail.

Les valeurs que nous avons mesurées sont comparées aux valeurs de Frantsvog *et al.* [127] et à celles de la base de données TENDL-09 [112] sur le graphique ci-dessous (Fig. 27). Frantsvog *et al.* a utilisé des cibles plus épaisses, la dispersion en énergie est donc plus importante et atteint 11 MeV pour un des points. Il n'est pas totalement correct de comparer directement ses valeurs aux nôtres car les gammes d'énergie sur lesquelles les valeurs sont intégrées sont trop différentes. Par conséquent, nous avons interpolé nos valeurs par une fonction de spline $\sigma(E)$. A partir de cette interpolation, il est possible de calculer les valeurs de section efficace σ_F sur une gamme d'énergie ΔE identique aux mesures de Frantsvog. Dans la formule suivante, Δx représente le parcours du faisceau pour l'intervalle d'énergie ΔE .

$$\sigma_F = \frac{\int_{\Delta E} \sigma(E) \cdot dx/dE \cdot dE}{\Delta x(\Delta E)} \quad (22)$$

Les points ainsi obtenus sont représentés par des cercles vides sur le graphique (Fig. 27). Il apparaît que nos mesures sont en accord avec celles de Frantsvog. Ce

résultat vient conforter la normalisation de la section efficace effectuée pour l' ^{14}O et le ^{10}C .

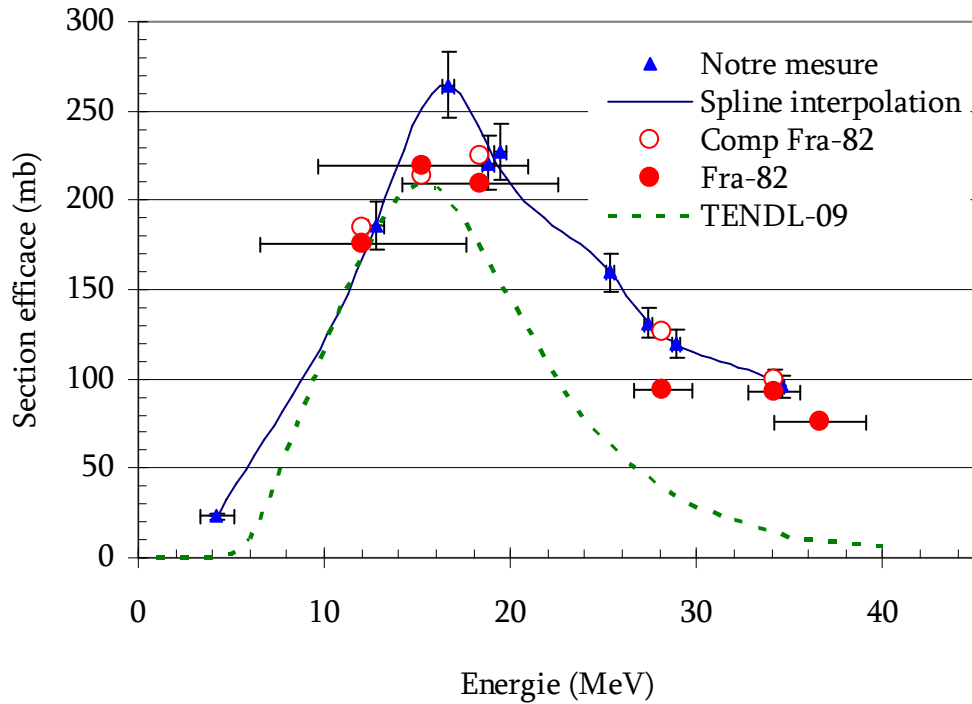


Fig. 27 _ Comparaison de notre mesure de section efficace aux valeurs de Frantsvog *et al.* et à celle de la base de données TENDL-09 pour la réaction $^{27}\text{Al}({}^3\text{He},2p){}^{28}\text{Al}$.

4.3.5.4. Vérification de la normalisation par l'irradiation de feuilles de cobalt.

De fines feuilles de cobalt (3 μm) sont disposées sur le rail dégradeur (voir la description du dispositif expérimental 4.3.1). Elles sont placées en amont des dégradeurs de sorte qu'elles ne seront bombardées qu'aux deux énergies délivrées par le cyclotron au cours de l'expérience (21,3 et 35,8 MeV). De nombreux isotopes sont produits au cours de l'irradiation des feuilles de cobalt par le faisceau d' ${}^3\text{He}$. Leur longue durée de vie permet d'effectuer les comptages longtemps après l'irradiation. Les sections efficaces de production de ces isotopes sont bien connues. Cette mesure assure une seconde vérification de la normalisation effectuée pour ${}^{14}\text{O}$ et ${}^{10}\text{C}$. Les isotopes observés, leurs rayonnements γ caractéristiques, les réactions associées ainsi que leurs Q de réactions sont présentés dans le tableau 5. Pour effectuer la comparaison avec nos mesures, nous avons pris en compte les sections efficaces mesurées par Fenyvesi *et al.* [129], Nagame *et al.* [130] et Szelecsényi *et al.* [131], Michel et Galas [132], Homma et Murakami [133] et Kondratyev *et al.* [134]. Les barres d'erreurs présentées dans

les graphiques ci-dessous ne prennent pas en compte l'erreur sur l'épaisseur des feuilles de cobalt (donnée à $\pm 25\%$ par le fournisseur, réduite à $\pm 10\%$ par une mesure de masse) puisque l'on suppose que cette erreur est systématique. Il faut néanmoins ajouter ces 10% d'erreur aux barres d'erreur pour obtenir l'erreur globale sur chaque mesure. De la même façon que dans la partie 4.3.5.3 la section efficace est corrigée des produits de réactions s'échappant de la feuille de cobalt. Le calcul donne 10% à 21,3 MeV et 16% à 38 MeV. Ces valeurs sont identiques au pourcent près pour tous les isotopes étudiés.

4.3.5.4.1. Production des isotopes du cuivre : $^{59}\text{Co}(\beta\text{He}, 2n)^{60}\text{Cu}$ et $^{59}\text{Co}(\beta\text{He}, n)^{61}\text{Cu}$

Le comptage de certaines des feuilles de cobalt est effectué peu de temps après l'irradiation. Cela permet de mesurer la production des isotopes ^{60}Cu et ^{61}Cu de durée de vie plus courte (23,7 m et 3,33 h respectivement). Ces feuilles ont été irradiées à 21,3 MeV.

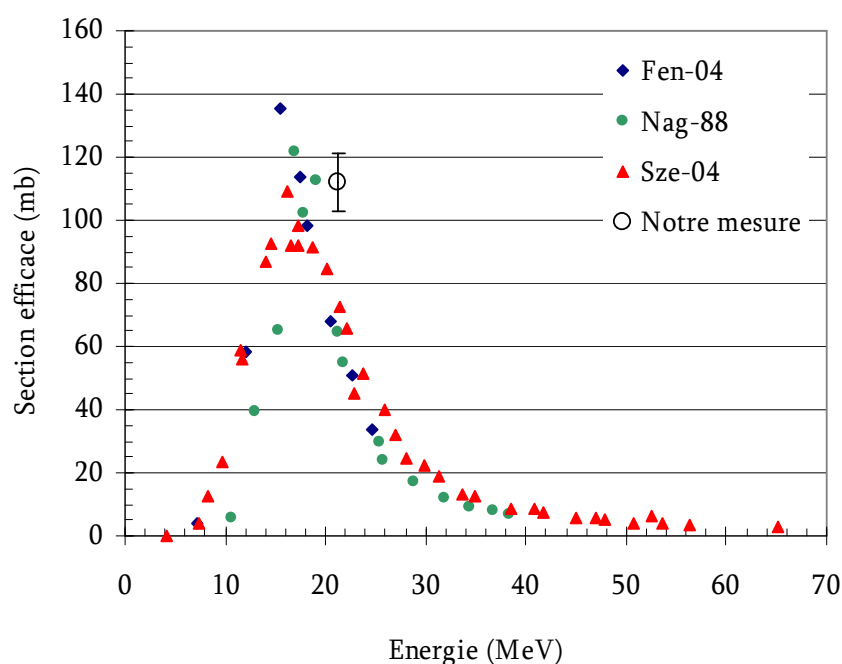


Fig. 28 _ Comparaison de notre mesure de section efficace aux valeurs obtenues dans la littérature pour la réaction $^{59}\text{Co}(\beta\text{He}, 2n)^{60}\text{Cu}$. Les barres d'erreurs ne prennent pas en compte les 10% d'incertitude sur l'épaisseur de la feuille de Co.

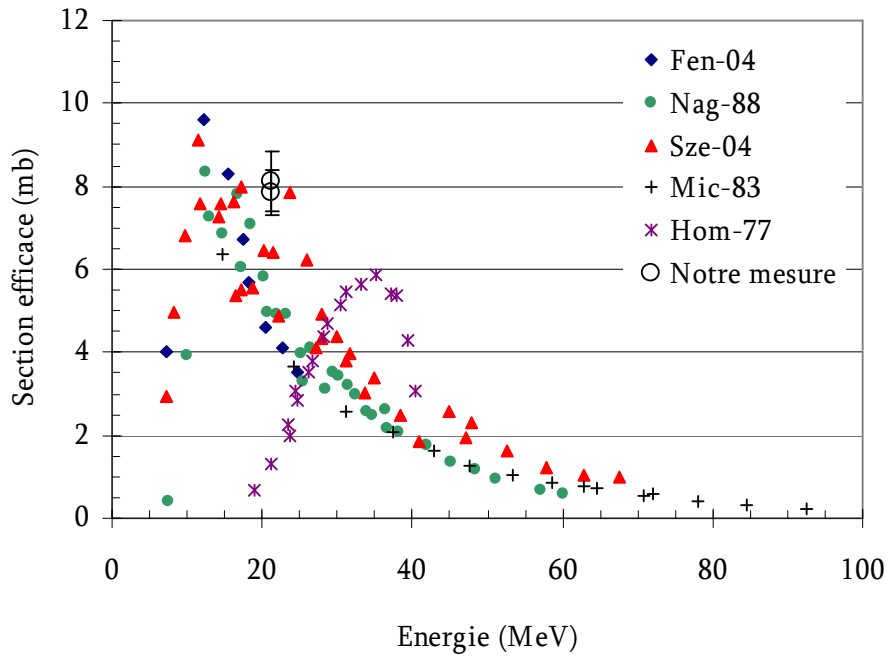


Fig. 29 _ Comparaison de notre mesure de section efficace aux valeurs obtenues dans la littérature pour la réaction $^{59}\text{Co}(\beta\text{He},n)^{61}\text{Cu}$. Les barres d'erreurs ne prennent pas en compte les 10% d'incertitude sur l'épaisseur de la feuille de Co.

4.3.5.4.2. Production des isotopes du cobalt : $^{59}\text{Co}(\beta\text{He},x)^{56}\text{Co}$, $^{59}\text{Co}(\beta\text{He},x)^{57}\text{Co}$ et $^{59}\text{Co}(\beta\text{He},x)^{58}\text{Co}$

Dans la gamme d'énergie utilisée, les réactions qui contribuent principalement à la production de ^{56}Co , ^{57}Co et ^{58}Co sont respectivement $(^3\text{He},2n+\alpha)$, $(^3\text{He},n+\alpha)$ et $(^3\text{He},\alpha)$ (voir les valeurs des Q de réactions du tableau 5). La production de ces isotopes est mesurée plusieurs semaines après l'irradiation, chaque comptage dure plus de deux jours. Le ^{58}Co possède un état isomérique de demi-vie 9,04 h. Il décroît exclusivement sur l'état fondamental ($T_{1/2} = 70,86$ d). Le comptage des feuilles de cobalt ayant été réalisé plusieurs semaines après l'irradiation, l'état isomérique a totalement décru vers le fondamental. Les sections efficaces obtenues sont alors représentatives de la somme de la production de l'état fondamental et isomérique (σ_{m+g}).

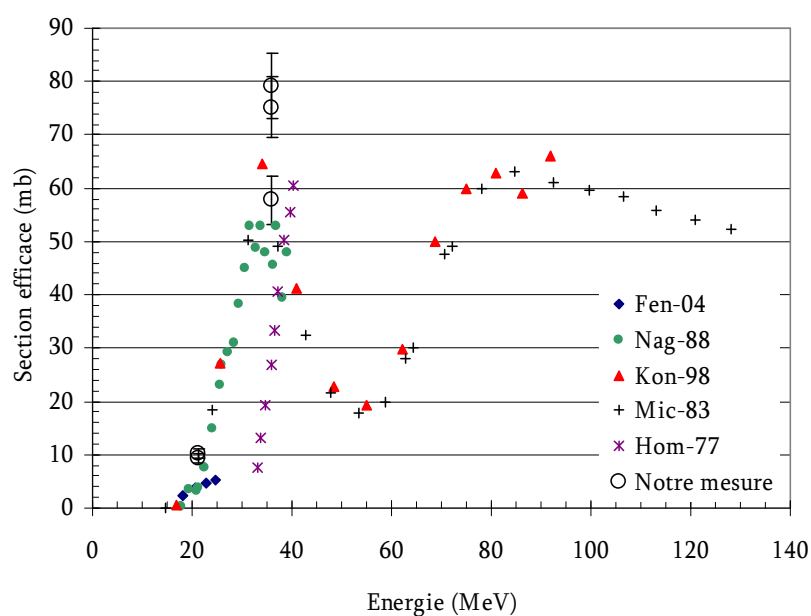


Fig. 30 _ Comparaison de notre mesure de section efficace aux valeurs obtenues dans la littérature pour la réaction $^{59}\text{Co}(\beta\text{He},x)^{56}\text{Co}$. Les barres d'erreurs ne prennent pas en compte les 10% d'incertitude sur l'épaisseur de la feuille de Co.

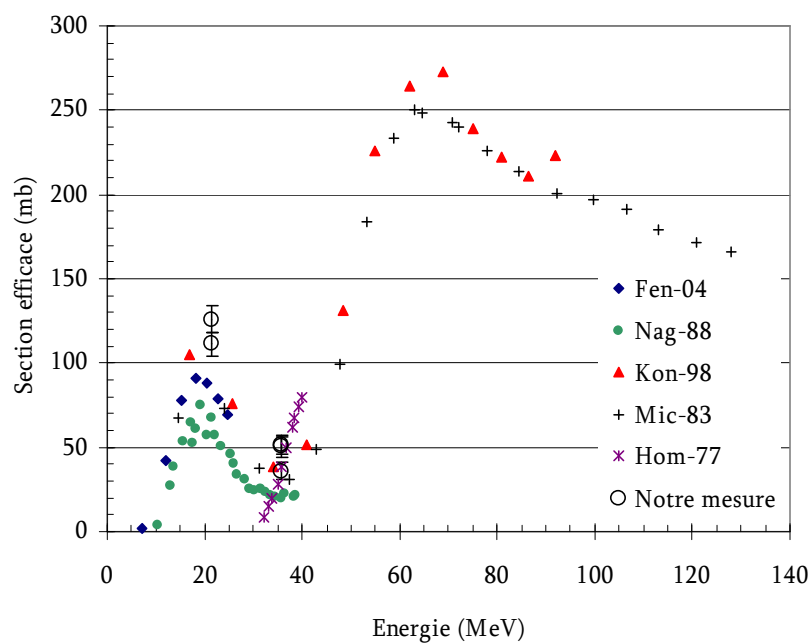


Fig. 31 _ Comparaison de notre mesure de section efficace aux valeurs obtenues dans la littérature pour la réaction $^{59}\text{Co}(\beta\text{He},x)^{57}\text{Co}$. Les barres d'erreurs ne prennent pas en compte les 10% d'incertitude sur l'épaisseur de la feuille de Co.

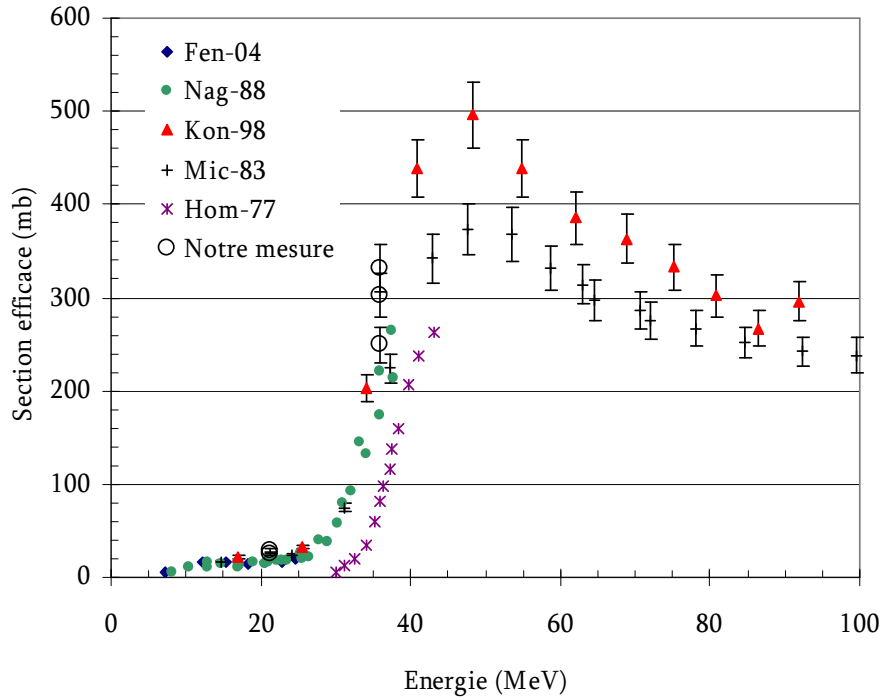


Fig. 32 _ Comparaison de notre mesure de section efficace aux valeurs obtenues dans la littérature pour la réaction $^{59}\text{Co}(\beta\text{He},n)^{58m+g}\text{Co}$. Les barres d'erreurs ne prennent pas en compte les 10% d'incertitude sur l'épaisseur de la feuille de Co.

Le tableau 8 résume les valeurs présentées dans les cinq graphiques ci-dessus (Fig. 28, Fig. 29, Fig. 30, Fig. 31 et Fig. 32). Ces graphiques montrent que nos valeurs sont systématiquement plus élevées que celles de la littérature. Une explication possible serait une mauvaise normalisation due à la mesure de l'intensité du faisceau primaire. Toutefois, cette hypothèse est contradictoire avec les excellents résultats obtenus pour les feuilles d'aluminium (voir la partie 4.3.5.3). Il paraît plus raisonnable d'incriminer l'épaisseur des feuilles de cobalt sur laquelle une incertitude de $\pm 10\%$ subsiste. Malgré les écarts observés, cette série de mesures confirme qu'aucune erreur importante liée à la normalisation des sections efficaces de l' ^{14}O et du ^{10}C n'a été commise.

Emoy (MeV)	ΔE (MeV)	σ (mb) de $^{59}\text{Co}(^3\text{He},x)$				
		^{60}Cu	^{61}Cu	^{56}Co	^{57}Co	$^{58\text{m}+g}\text{Co}$
21,3	0,4	112 ± 10	$7,9 \pm 0,6$	10 ± 1	126 ± 9	28 ± 3
			$8,1 \pm 0,8$	$9,3 \pm 0,9$	111 ± 8	25 ± 3
				75 ± 7	51 ± 7	302 ± 28
35,8	0,3			58 ± 6	36 ± 7	250 ± 23
				79 ± 7	50 ± 8	332 ± 30

tableau 8 _ Valeurs expérimentales de la section efficace des réactions du type $^{59}\text{Co}(^3\text{He},x)$. Les barres d'erreurs ne prennent pas en compte les 10% d'incertitude sur l'épaisseur de la feuille.

4.3.6. Discussion

L'expérience menée au NPI (Nuclear Physics Institute, Řež, Rép. Tchèque) s'avère fructueuse. Elle a permis de mesurer, pour la première fois, la section efficace de production du ^{10}C , issu du bombardement d'une cible de carbone par un faisceau primaire d' ^3He d'énergie comprise entre 7 et 35 MeV (4.3.5.1). Une nouvelle mesure de la fonction d'excitation de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ est présentée dans cette même gamme d'énergie. De minces feuilles d'aluminium et de cobalt furent irradiées dans les mêmes conditions. Les sections efficaces de production des noyaux ^{28}Al , ^{60}Cu , ^{61}Cu , ^{56}Co , ^{57}Co et ^{58}Co en sont déduites. La comparaison de ces valeurs avec celles trouvées dans la littérature permet de contrôler l'exactitude de la normalisation de notre mesure de la fonction d'excitation du ^{10}C et ^{14}O . Ces résultats permettent de calculer le taux de production d' ^{14}O dans une cible de carbone épaisse. Pour un faisceau d' ^3He de 1 mA à 35 MeV, il est estimé à $2,2 \times 10^{11}$ pps. Cette mesure démontre qu'il n'est pas utile d'utiliser une énergie du faisceau d' ^3He supérieure à 35 MeV, la section efficace chutant à 1,3 mb à cette énergie.

Les expériences antérieures de conception de cible ISOL ont montré qu'il n'est pas évident de déposer une intensité de faisceau primaire de 1 mA à une énergie de 35 MeV sur une cible dont la section est limitée. Cette limite est principalement imposée par le volume des systèmes de production qui doit être réduit pour que l'effusion entre cible et source soit limité, et par l'encombrement des systèmes ISOL qui doit rester « faible » car constituant un déchet radioactif après irradiation. La cible doit donc être conçue de façon à pouvoir accepter la puissance incidente sans que sa température ne dépasse son point de fusion. Il convient de mener une étude thermique afin de guider la conception de la cible et permettre ainsi de maximiser l'intensité du faisceau primaire qu'il est possible d'utiliser.

4.4. Conception et étude thermique.

La cible utilisée pour produire l' ^{14}O doit permettre de recevoir une intensité de faisceau primaire maximale tout en offrant une diffusion et une effusion des éléments produits les plus rapides possibles. La cible en carbone doit par conséquent :

- pouvoir dissiper une puissance importante, soit par rayonnement (grande surface), soit par contact (conduction thermique importante),
- présenter une épaisseur faible, pour limiter la durée de diffusion de l' ^{14}O ,
- être agencée de manière à favoriser l'effusion vers la source d'ionisation.

Puisque la formation de la molécule volatile C^{14}O dans la cible permet d'obtenir une effusion rapide jusqu'à la source, la dernière exigence est relativement simple à remplir pour peu que le volume d'effusion soit limité. Les deux premières exigences sont plus difficiles à remplir simultanément car si la cible a une faible épaisseur, la conduction de la chaleur sera réduite. Nous nous attacherons cependant à satisfaire l'exigence d'une faible épaisseur plutôt que celle de la conduction.

Un tel type de cible a déjà été étudié pour la production de ^{13}N à UCL [135,136] et donne des pistes à suivre pour la conception. Néanmoins, étant donné la longue durée de vie de l' ^{13}N par rapport à l' ^{14}O (9,96 m et 70,6 s respectivement), la diffusion des éléments hors de la cible n'a pas été considérée comme un critère essentiel dans leurs développements.

Dans un premier temps, il convient d'étudier les matériaux à utiliser dans un tel système de production. Une attention particulière est portée à la nuance de graphite à utiliser. Deux cibles satisfaisant les critères précédents ont été retenues et sont présentées en détails dans les parties suivantes (4.4.2 et 4.4.3). La première est constituée d'une unique feuille de carbone inclinée par rapport à l'axe du faisceau. La deuxième est composée d'un empilement de feuilles de carbone.

4.4.1. Type de matériaux à utiliser.

4.4.1.1. Conteneur

Le conteneur délimite le volume dans lequel les éléments produits vont effuser. Il permet de refroidir la cible de carbone par rayonnement mutuel. Pour que ce refroidissement soit efficace, le conteneur doit être maintenu à basse température (environ 500 K) par circulation d'eau.

L'utilisation d'un conteneur en cuivre semble être appropriée de part sa conductivité thermique ($401 \text{ W.m}^{-1}\text{.K}^{-1}$) à comparer à celle de l'aluminium ($250 \text{ W.m}^{-1}\text{.K}^{-1}$) ou encore à celle de l'inox ($16 \text{ W.m}^{-1}\text{.K}^{-1}$) qui sont souvent employés pour la réalisation de chambre à vide. De plus, sa température de fusion est relativement élevée (1084°C).

Si la cible est de faible épaisseur et sa température élevée (2000°C), son refroidissement s'effectue majoritairement par rayonnement vers le conteneur. Par conséquent, il est intéressant de diminuer le coefficient de réflexion de la paroi intérieure du conteneur. Un dépôt de carbone en surface constitue une solution technique fiable, n'induisant pas de dégazage sous vide et résistant à de hautes températures [137].

4.4.1.2. Stoppeur

Un stoppeur de faisceau est placé derrière la cible en contact avec le fond du conteneur. Il n'intervient qu'en cas de rupture de la cible et il doit alors permettre de dissiper la puissance totale du faisceau primaire. Il sera constitué d'un bloc épais (devant le parcours du faisceau primaire) de carbone. En effet, le carbone présente une température d'évaporation élevée et permet de continuer à produire (en quantité moindre) l' ^{14}O en cas de rupture de la cible. Le contact thermique du stoppeur avec le conteneur doit être le meilleur possible afin de permettre une dissipation de puissance importante.

4.4.1.3. Nuance de graphite de la cible

Une question se pose quant au type de carbone à utiliser dans cette cible de production. Comme nous l'avons vu précédemment la cible doit permettre une diffusion rapide des éléments produits et pouvoir dissiper un important dépôt de puissance. Dans le cas d'une cible constituée d'un empilement de feuilles, l'utilisation d'un graphite moins dense permettrait de réduire le dépôt de puissance par cible.

Trois types de feuilles de carbones ont été testés : deux feuilles de graphite rigide d'épaisseur 125 et 100 μm et une feuille de graphite flexible d'épaisseur 125 μm . Les propriétés de chacun de ces graphites sont présentées en annexe 1.3. Le comportement thermique de ces feuilles soumises à un important dépôt de puissance par implantation d'un faisceau de protons a été étudié. Des mesures de porosité ont aussi été effectuées.

4.4.1.3.1. Mesures thermiques à AFIRA.

Ces tests ont pour but de mesurer l'élévation de température induite par l'implantation d'un faisceau dans une cible de carbone. Le comportement de différents types de carbone et de différentes épaisseurs de cible sera comparé afin de déterminer les paramètres les mieux adaptés au système de production final. L'expérience est réalisée au CENBG (Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan [138]) sur la plateforme AIFIRA (Applications Interdisciplinaires de Faisceaux d'Ions en Région Aquitaine). Cette installation est équipée d'un accélérateur électrostatique simple étage de 3,5 MV qui délivre des faisceaux

d'ions de H^+ , D^+ , He^+ . Au cours de l'expérience, nous avons bombardé des cibles de carbone avec un faisceau de protons à 2,5 puis 3 MeV et une intensité maximum de 20 μA (soit au maximum 60 W). Nous avons utilisé le faisceau de protons plutôt que celui d' 3He car le parcours des protons dans les cibles est plus important. La puissance ainsi déposée est plus homogène et les tests sont réalisés dans des conditions plus proches du dispositif final (faisceau d' 3He à 35 MeV).

4.4.1.3.1.1. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental permet de mesurer la température des cibles en ligne. Il a été développé par l'équipe de Bordeaux [139] pour étudier les cibles destinées à la production d'ions radioactifs par fusion-évaporation dans le cadre de SPIRAL 2. Le schéma (Fig. 33) présente ce dispositif.

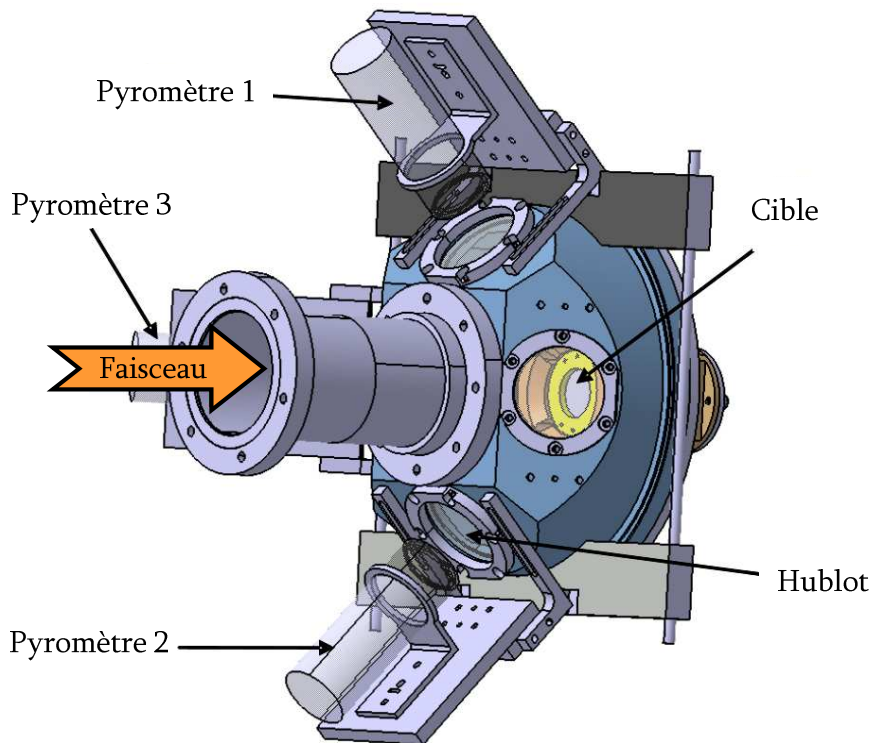


Fig. 33 _ Dessin technique du dispositif de mesure de température de cible.

La cible placée dans l'enceinte sous vide est maintenue par deux anneaux en céramique. La faible conductivité thermique de ce matériau ($1,46 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) permet d'isoler thermiquement la cible du reste de la structure. Ce support est placé dans un logement en cuivre refroidi à la température ambiante par circulation d'eau. Au travers de hublots, trois pyromètres monochromatiques mesurent l'évolution de la température de la cible sous irradiation du faisceau.

Chacun de ces pyromètres possède une gamme de mesures permettant de couvrir une plage de température totale allant de 0 à 3000 °C. Ils sont fournis par la société Raytek [140]. Sa gamme de température étant trop basse, le pyromètre n°1 n'a pas été utilisé. Le pyromètre n°2 possède une gamme de mesure de température de 250 à 1100°C et le pyromètre n°3 de 650 à 3000°C. Il faut indiquer au pyromètre la valeur de l'émissivité du matériau sur lequel la mesure est réalisée. Pour chacun des pyromètres une courbe d'étalonnage a été réalisée (voir annexe 1.4) afin de mesurer l'évolution de la température donnée par le pyromètre en fonction de l'émissivité. Ces courbes montrent qu'une importante erreur sur l'émissivité indiquée à l'appareil conduit à peu de différences sur la température mesurée. Pour le graphite rigide l'émissivité sera réglée à 0,85 et à 0,5 pour le graphite flexible. Placés à distance focale, les deux premiers pyromètres présentent un point focal de 2,9 mm de diamètre, le dernier de 0,6 mm. Chaque pyromètre est incliné de 45° par rapport au centre de la cible. Ils sont alignés manuellement au centre de la cible grâce à un réticule. Les hublots sont choisis de sorte que leur bande passante corresponde à la réponse spectrale du capteur. Le pyromètre 2 est associé à un hublot en Saphir (Al_2O_3) et le pyromètre 3 à un hublot en Verre de Quartz (SiO_2).

Une série d'éléments est placée le long de la ligne afin de contrôler le faisceau. On trouve dans l'ordre : une coupe de Faraday insérable (intensité notée I_{CFav}), des fentes, un profileur insérable, la cible polarisée (intensité sur cible notée I_{Cible}), puis une coupe de Faraday fixe mais de dimension plus petite que la cible (intensité notée I_{CFar}). Il est possible de régler la focalisation du faisceau sur la cible, et de changer ainsi le dépôt de puissance surfacique sur la cible. Le profileur insérable permet de mesurer la taille du faisceau juste avant la cible.

Les cibles sont constituées de disques de 50 mm de diamètre. Comme nous l'avons dit précédemment, trois types de cibles ont été testés : Deux feuilles de graphite rigide d'épaisseur 125 et 100 μm et une feuille de graphite flexible d'épaisseur 125 μm . Pour simplifier la mesure de la puissance déposée dans la cible, l'énergie du faisceau est choisie de manière à ce qu'il soit totalement arrêté dans la cible. Le parcours des protons dans les différentes cibles en fonction de l'énergie, a été calculé avec le code LISE++ [125], en utilisant le modèle à basse énergie de J. F. Ziegler [126]. Il vaut respectivement 114 μm et 155 μm dans le graphite flexible à 2,5 MeV et 3 MeV. Pour le graphite rigide, ces valeurs passent à 70 μm (2,5 MeV) et 95 μm (3 MeV). Les propriétés des différents graphites sont présentées dans l'annexe 1.3. Parmi celles pouvant influencer la température, les principales différences concernent les valeurs d'émissivité et de conduction thermique. En effet, à température ambiante, l'émissivité vaut 0,5 pour le graphite

flexible, alors qu'elle atteint 0,8 pour le graphite rigide. De plus, la conductivité du graphite flexible est anisotrope : alors qu'il se comporte comme un graphite classique dans le sens du plan ($k \approx 150 \text{ W.m}^{-1}\text{.K}^{-1}$), sa conductivité vaut environ $5 \text{ W.m}^{-1}\text{.K}^{-1}$ dans le sens de l'épaisseur. Ces différences de propriétés induisent-elles d'importantes différences sur la température de la cible ?

4.4.1.3.1.2. Résultats

Le graphique (Fig. 34) présente l'évolution de la température des trois cibles en fonction du dépôt de puissance. La puissance est calculée à partir de l'intensité mesurée sur la cible et de l'énergie du faisceau. La température des deux graphites rigides semble proche (écart de température inférieur à 160 K). La température maximale atteinte pour les cibles de graphite rigide d'épaisseur 125 et 100 μm est respectivement de 2560 et 2430 $^{\circ}\text{C}$. A cette température les cibles sont percées. Pour une même puissance, la température de la cible de graphite flexible semble légèrement moins élevée que celle du graphite rigide. La température pour laquelle la cible perce n'a pas pu être atteinte de par la limitation d'intensité du faisceau.

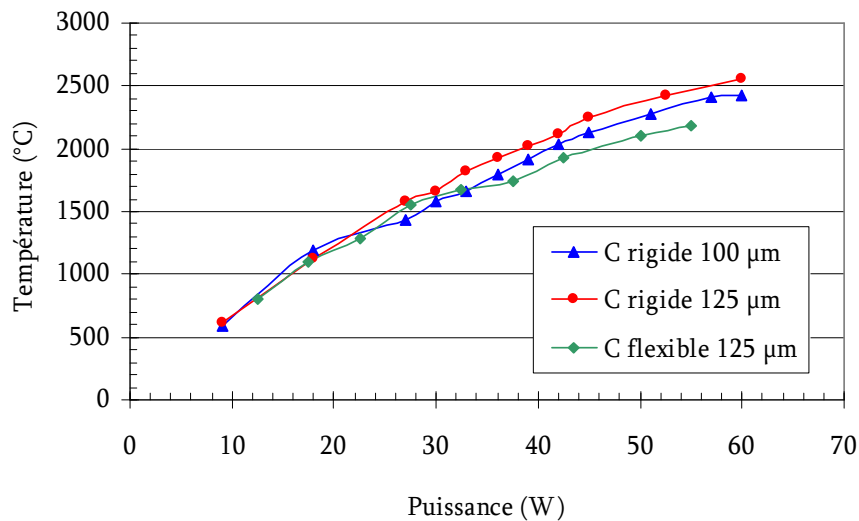


Fig. 34 _ Evolution de la température des trois cibles en fonction du dépôt de puissance.

Néanmoins, ces résultats sont entachés d'une erreur importante. En effet, les profils du faisceau enregistrés à chacune des mesures montrent une variation importante de sa taille et forme au cours des mesures (la largeur à mi hauteur du faisceau varie de 2,8 à 6,1 mm en X et de 1,4 à 2,7 mm en Y). Les valeurs mesurées ne sont pas directement comparables, il faudrait présenter l'évolution de la température en fonction de la puissance surfacique déposée sur la cible. Toutefois,

une autre limitation du dispositif expérimental, présenté ci-dessous, nous en empêche.

Nous avons vu que la cible utilisée est très fine et qu'elle est maintenue par un support isolant. Par conséquent, dès que la température de la cible dépasse quelques centaines de degré Celsius, la dissipation de puissance se fait presque uniquement par rayonnement de la cible vers le conteneur. Toutefois, l'évolution de la température de la cible en fonction du dépôt de puissance ne suit pas la loi de Stefan. Ceci s'explique par la petite taille du faisceau. En effet, le rayon sur lequel est effectué le dépôt de puissance est comparable à la longueur sur laquelle s'établit le gradient de température lié à ce dépôt de puissance. Pour mieux comprendre ce phénomène, une série de simulations est effectuée à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics [141]. Un disque de 5 cm de diamètre et de 100 μm d'épaisseur reçoit en son centre un dépôt de puissance sur un rayon que l'on fait varier. La puissance volumique est gardée constante dans le cylindre lorsque l'on fait varier le rayon. La conduction thermique est fixée à $50 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ et le disque d'émissivité 0,85 rayonne vers l'ambient à 500 K. Les résultats sont présentés sur le graphique ci-dessous (Fig. 35). Pour un dépôt de puissance sur un rayon supérieur à 15 mm la température tend vers la valeur calculée avec la loi de Stephan (1276 K). Pour des rayons inférieurs à 15 mm, on constate que la température chute nettement, le rayon devient du même ordre de grandeur que la longueur sur laquelle s'établit le gradient de température, la loi de Stephan n'est plus valable dans ce domaine.

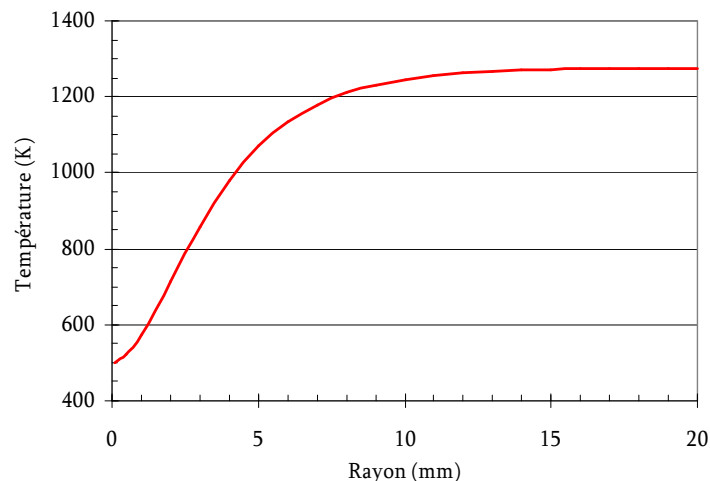


Fig. 35 _ Evolution de la température d'une cible en fonction du rayon sur lequel est effectué le dépôt de puissance. Le calcul est effectué à l'aide du code COMSOL [141].

Avec les propriétés des feuilles de graphite utilisées, pour obtenir une zone où la température est homogène et principalement gouvernée par le rayonnement, il faudrait utiliser un faisceau plat de rayon supérieur à 15 mm.

4.4.1.3.1.3. Conclusions

La température maximale pour laquelle la cible de graphite rigide est détruite a été mesurée à 2600 °C. Le résultat majeur de cette expérience est le faible écart de température mesuré entre les différentes cibles soumises à un même dépôt de puissance. Cette observation suggère que les différences de propriétés thermomécaniques (émissivité et anisotropie de la conduction thermique) des divers graphites ont peu d'influence sur la température de la cible. Néanmoins, ces résultats sont entachés d'une erreur importante due à la trop petite taille du faisceau. Ce type d'expérience doit être effectué sur une installation permettant d'utiliser des faisceaux plus largement défocalisés et plus intenses afin de mettre clairement en évidence le rôle du rayonnement et de l'émissivité de la cible.

4.4.1.3.2. Mesures de porosité à Orsay.

Des mesures de porosité ont été effectuées par B. Hy de l'IPNO (Institut de Physique Nucléaire d'Orsay [142]) pour deux des graphites testés précédemment. Les porosités ouvertes et fermées ont été mesurées à l'aide d'un pycnomètre à hélium. La porosité ouverte prend en compte les pores qui communiquent avec l'extérieur du matériau et la porosité fermée, celles qui sont isolées dans le matériau.

Les résultats sont présentés dans le tableau 9. La valeur de porosité totale mesurée pour le graphite rigide est proche de celle donnée en annexe 1.3 pour le graphite de type POCO.

	graphite flexible 125 μm	graphite rigide 125 μm
Porosité totale (%)	48	24
Porosité fermée (%)	5	3
Porosité ouverte (%)	43	21

tableau 9 _ Résultats des mesures de porosité effectués à l'IPNO.

Au vu de la porosité de ces deux échantillons, du point de vue de la diffusion hors de la cible, l'utilisation du graphite flexible semble préférable. Néanmoins, il faudrait disposer de mesures de la taille de ces pores et de la taille de la microstructure du matériau pour pouvoir apporter une réponse indiscutable. Des mesures à l'aide d'un microscope à balayage électronique seraient nécessaires.

4.4.2. Cible avec une feuille inclinée.

Après ces considérations sur le choix des matériaux à employer, deux configurations de cible de production d' ^{14}O sont proposées. Dans cette partie, la cible est constituée d'une unique feuille inclinée par rapport à la direction du

faisceau primaire (Fig. 36). La feuille placée dans le conteneur présente une grande surface de rayonnement en regard avec les parois du conteneur refroidi. A section du faisceau primaire constante, plus la feuille est inclinée et plus sa surface rayonnante augmente donc plus la puissance qui peut être dissipée est importante. Cependant, la longueur du conteneur doit rester raisonnable afin de limiter le temps d'effusion des éléments vers la source d'ions. Il est préférable d'utiliser une feuille de graphite rigide (type POCO) avec une taille de grain de l'ordre du micromètre pour favoriser la diffusion des éléments hors de la cible. L'épaisseur de la feuille est choisie pour stopper totalement le faisceau d' ^3He à 35 MeV.

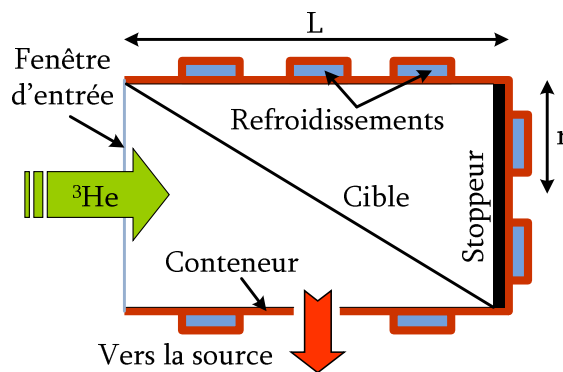


Fig. 36 _ Schéma de principe de la cible de production d' ^{14}O avec une feuille inclinée.

Ce système est simple, et son comportement thermique peut être traité de manière analytique, moyennant quelques hypothèses simplificatrices. Pour cela, un bilan thermique est effectué sur la cible : la puissance qu'elle reçoit est égale à la puissance qu'elle émet. Les grandeurs suivantes sont introduites : S la surface émissive, ε l'émissivité de la surface, T la température de la surface et σ la constante de Stefan-Boltzmann. Ces grandeurs seront indicées « ci » lorsqu'elles sont liées à la cible et « co » pour le conteneur.

La puissance émise par la cible est gouvernée par la loi de Stefan, elle s'exprime de la manière suivante :

$$P_{\text{émise}} = S_{\text{ci}} \cdot \sigma \cdot \varepsilon_{\text{ci}} \cdot T_{\text{ci}}^4 \quad (23)$$

Dans cette expression, la partie de la puissance reçue par la cible qui est réfléchiée est négligée. En effet, l'émissivité de la cible est élevée (0,85 pour le graphite rigide), elle est donc peu réfléchissante. La puissance que la cible dissipe par conduction thermique est aussi négligée.

La puissance reçue par la cible est composée de trois termes :

- la puissance déposée par le faisceau. Le faisceau sera considéré plat sur un rayon de 4 cm.

- la puissance émise par le conteneur vers la cible,
- la puissance reçue par le conteneur et qui est réfléchiée vers la cible.

Toute la puissance émise par la cible est reçue par le conteneur. L'inverse n'est pas vrai, le conteneur peut rayonner vers lui-même, il faut introduire le facteur de forme du conteneur vers la cible $F_{co \rightarrow ci}$. Le conteneur englobe entièrement la cible, dans ce cas simple le facteur de forme $F_{co \rightarrow ci}$ n'est autre que le rapport de S_{co} sur S_{ci} . Une autre hypothèse simplificatrice est effectuée ici : toutes les surfaces intérieures du conteneur sont refroidies. Dans la réalité, la fenêtre d'entrée du conteneur sera chauffée par le faisceau primaire. En considérant une fenêtre de tantale de 7 μm d'épaisseur, le faisceau primaire d' ^3He (1 mA, 36 MeV) y déposera 1 kW.

$$P_{re\acute{c}ue} = P_{faisceau} + S_{co} \cdot \sigma \cdot \epsilon_{co} \cdot T_{co}^4 \cdot F_{co \rightarrow ci} + P_{\acute{e}mise} \cdot (1 - \epsilon_{co}) \cdot F_{co \rightarrow ci} \quad (24)$$

Les surfaces émissives du conteneur et de la cible peuvent s'exprimer en fonction du rayon et de la longueur du conteneur de la manière suivante :

$$S_{ci} = \pi \cdot r \cdot \sqrt{(2r)^2 + L^2} \quad ; \quad S_{co} = 2\pi \cdot r \cdot (r + L) \quad (25)$$

Pour le calcul, la puissance déposée dans la cible par le faisceau est fixée à 35 kW (35 MeV ; 1 mA), le rayon intérieur du conteneur à 4 cm et l'émissivité de la cible à 0,85. La longueur du conteneur nécessaire pour dissiper cette puissance est calculée en fonction de la température de la cible et de l'émissivité du conteneur, le graphique (Fig. 37) présente ces résultats.

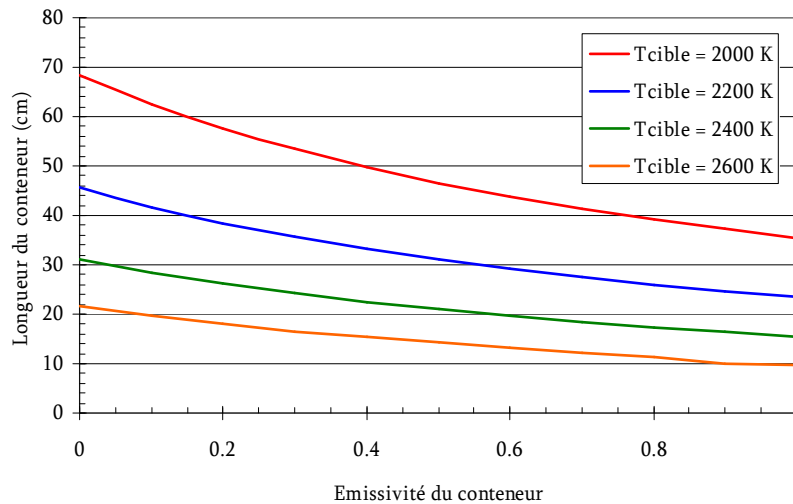


Fig. 37 _Evolution de la longueur du conteneur en fonction de son émissivité pour différentes températures de la cible.

Un dépôt de carbone sur la paroi interne du conteneur pourrait conduire à une émissivité de 0,85. En fixant la température de la cible à 2300 K, le taux d'évaporation du carbone POCO est de 40 μm par mois (voir la présentation de L. Tecchio lors de la SPIRAL 2 Week de 2009 [143]). Dans ces conditions, un conteneur de 20 cm de long est nécessaire et la cible se trouve inclinée de 22° par rapport à l'axe du faisceau. Pour stopper totalement le faisceau d' ^3He à 35 MeV dans cette feuille inclinée (on rappelle que la densité du graphite rigide vaut $1,8 \text{ g.cm}^{-3}$), une épaisseur de 280 μm est nécessaire. De manière pratique, une feuille commerciale d'épaisseur supérieure à 500 μm pourra être utilisée.

4.4.3. Cible avec un empilement de feuilles.

Dans cette partie, la configuration de la cible constituée d'un empilement de disques est étudiée en détails. La figure (Fig. 38) présente un schéma de principe de cette solution. Cette configuration permet de répartir la puissance du faisceau dans plusieurs feuilles et d'augmenter ainsi la surface rayonnante.

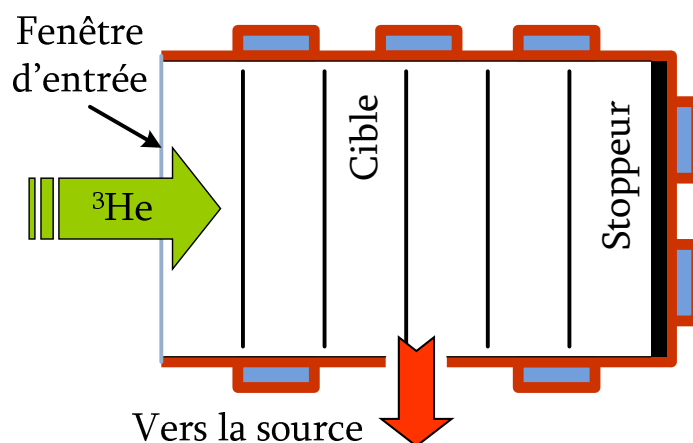


Fig. 38 _ Schéma de principe de la cible de production d' ^{14}O avec un empilement de feuilles.

L'expérience menée au CENBG (4.4.1.3.1) a démontré que l'élévation de température induite par l'implantation d'un faisceau dans une feuille est peu dépendante du type de graphite choisi. Néanmoins, cette expérience ne permet pas de déterminer le type de graphite le mieux adapté, d'un point de vue thermique à ce type de cible. En effet, le graphite flexible présente l'avantage d'être moins dense. Le dépôt de puissance par disque sera donc moindre. Toutefois, le nombre de disques à superposer dans l'assemblage cible sera plus important et ainsi la surface des disques en vis-à-vis avec la paroi refroidie du conteneur est réduite. Ces deux effets antagonistes influencent beaucoup le choix du graphite pour ce type de cible. Le bon compromis entre ces effets ne peut pas être étudié analytiquement. Une série de simulations thermiques est donc

effectuée afin de déterminer le type de graphite idéal et de comparer cette solution à la précédente (4.4.2). L'objectif est aussi d'observer les tendances lors de la variation de divers paramètres afin de guider la conception d'un premier prototype. L'influence de l'émissivité de la paroi intérieure du conteneur est étudiée. La taille et la forme du faisceau primaire arrivant au module de production n'étant pas pour l'instant définies, l'effet de ces paramètres sur la température de la cible est aussi examiné. Ces simulations sont réalisées dans les mêmes conditions que le calcul analytique de la partie précédente (4.4.2), c'est-à-dire un conteneur de 20 cm de longueur et de 4 cm de rayon dont les parois intérieures sont maintenues à 500 K. Les simulations sont réalisées à l'aide du module « transferts de chaleur » du logiciel COMSOL Multiphysics [141]. COMSOL Multiphysics est un logiciel pour la modélisation et la résolution de toutes sortes de problèmes basés sur des équations aux dérivées partielles. Ce logiciel permet de résoudre des systèmes complexes gouvernés par des phénomènes physiques couplés. Le module de transfert de chaleur est dédié à la résolution de problèmes impliquant une combinaison des phénomènes de conduction, convection et rayonnement. Les simulations nécessitent un temps de calcul important (plusieurs heures), car elles font intervenir de nombreuses surfaces rayonnant mutuellement. L'utilisation du code a été validée par comparaison de ses résultats avec un logiciel de simulation thermique (SAMCEF Bacon) couramment utilisée au CENBG et au GANIL. Cette validation est présentée en annexe 1.5.

4.4.3.1. Choix du type de graphite.

Cette série de simulations permet de comparer l'utilisation des différents types de graphite dans l'empilement cible : un carbone rigide d'épaisseur 125 μm , un carbone flexible d'épaisseur 125 μm et un carbone flexible d'épaisseur 75 μm . Les propriétés des différents graphites sont présentées en annexe 1.3. L'émissivité des disques de graphite rigide et du conteneur est fixée à 0,85 et celle du graphite flexible à 0,5. Le nombre de disques de l'empilement et le dépôt de puissance dans chacun des disques, présenté dans le tableau 10, est calculé à l'aide du code LISE++ [125]. Ce dépôt de puissance est calculé en considérant un faisceau de 1 mA, plat sur un rayon de 4 cm. Les disques sont espacés uniformément dans le conteneur. Le disque n°1 correspond au dernier disque dans lequel le faisceau est arrêté.

N° de disque	Puissance volumique déposée pour 1 mA ($\text{W} \cdot \text{mm}^{-3}$)		
	C rigide 125 μm	C flexible 125 μm	C flexible 75 μm
17	-	-	3,3
16	-	-	3,4
15	-	-	3,5
14	-	-	3,6
13	-	-	3,7
12	-	-	3,8
11	-	-	3,9
10	-	3,3	4,1
9	-	3,5	4,4
8	-	3,6	4,6
7	-	3,8	5,0
6	5,6	4,1	5,4
5	5,9	4,6	6,0
4	6,6	5,1	6,9
3	7,7	6,0	8,4
2	9,7	7,9	11,9
1	20,3	13,7	10,9

tableau 10_ Calculs de la répartition du dépôt de puissance volumique dans les différents disques constituant la cible.

La température maximale de chacun des disques (au centre) de l'empilement en fonction de l'intensité du faisceau d' ^3He est calculée pour chaque type de graphite. Les résultats sont présentés dans les trois graphiques ci-dessous (Fig. 39, Fig. 40 et Fig. 41).

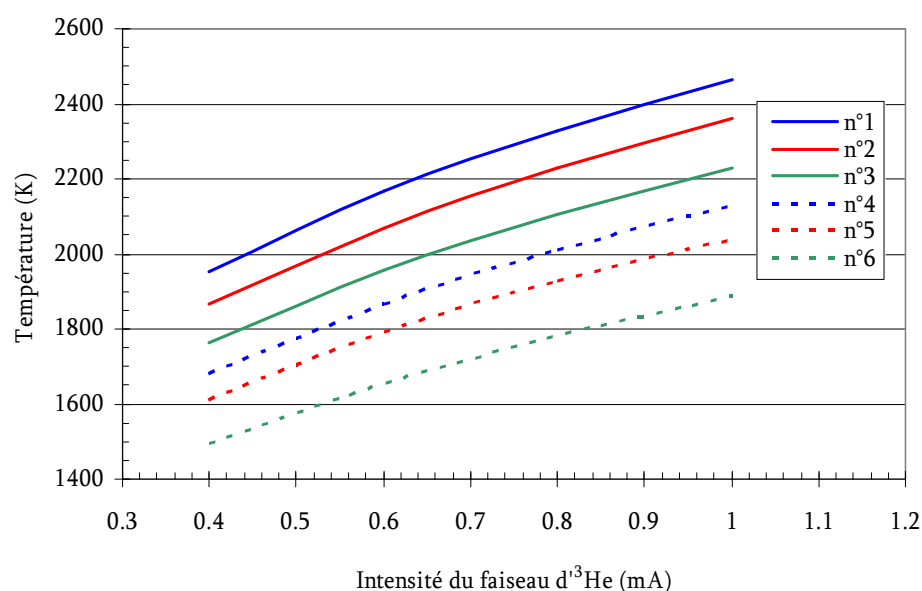


Fig. 39_ Evolution de la température maximale des disques de l'empilement en fonction de l'intensité du faisceau d' ^3He pour le graphite rigide d'épaisseur 125 μm .

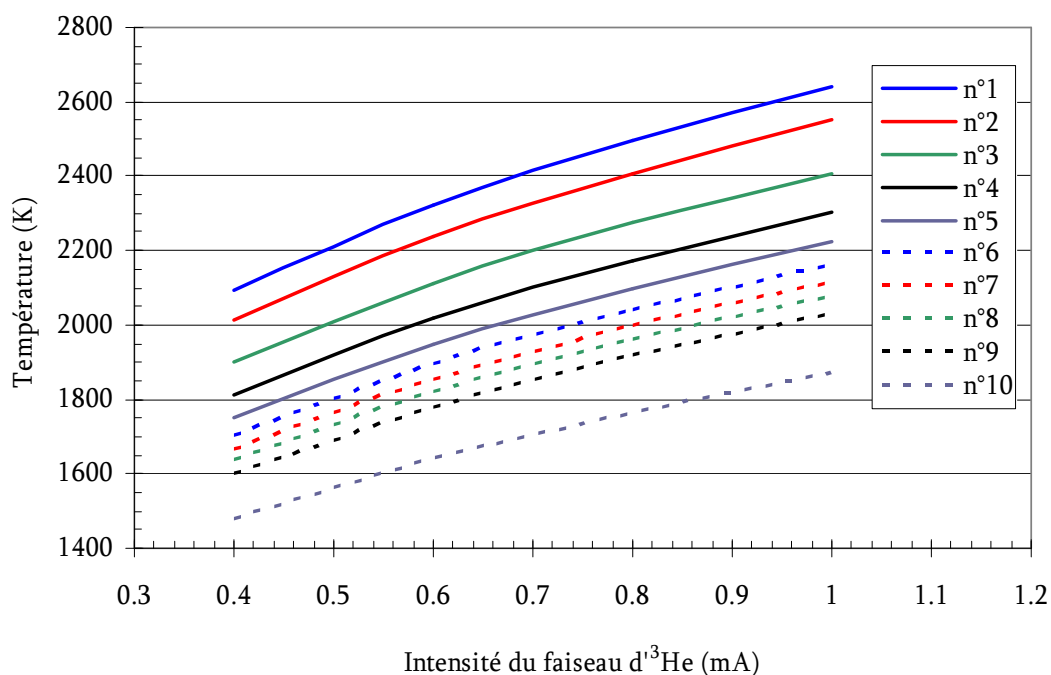


Fig. 40 _ Evolution de la température maximale des disques de l'empilement en fonction de l'intensité du faisceau d'³He pour le graphite flexible d'épaisseur 125 µm.

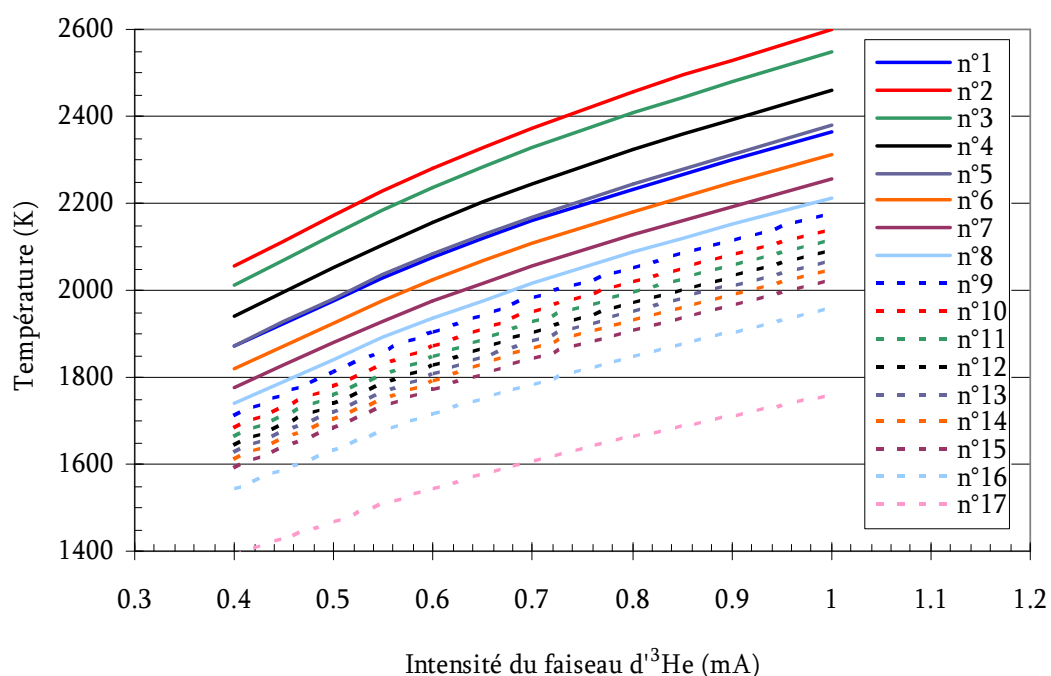


Fig. 41 _ Evolution de la température maximale des disques de l'empilement en fonction de l'intensité du faisceau d'³He pour le graphite flexible d'épaisseur 75 µm.

On constate que c'est la cible constituée d'un empilement de disques de graphite rigide de 125 μm qui conduit aux températures les moins élevées. L'écart important de température (écart de 600 K calculé pour le graphite rigide) entre le premier et le dernier disque de l'empilement est dû aux différences de dépôt de puissance. Ces deux disques présentent un vis-à-vis avec les parois refroidies du conteneur plus important que les autres disques, ils dissipent ainsi plus de chaleur.

4.4.3.2. Optimisation de la cible.

A partir des résultats précédents, nous avons cherché à optimiser la configuration de la cible afin de diminuer la température maximale de la cible et de la rendre plus uniforme dans les différents disques. Le point de départ est l'empilement de disques de graphite rigide. Le dernier disque présentant un dépôt de puissance important (voir le tableau 10) est remplacé par trois feuilles de graphite flexible d'épaisseur 75 μm . L'espacement entre les différents disques est optimisé en fonction du dépôt de puissance reçu par chacun de ces disques. Les résultats obtenus pour une intensité de faisceau primaire de 1 mA sont comparés aux valeurs calculées précédemment sur le graphique ci-dessous (Fig. 42).

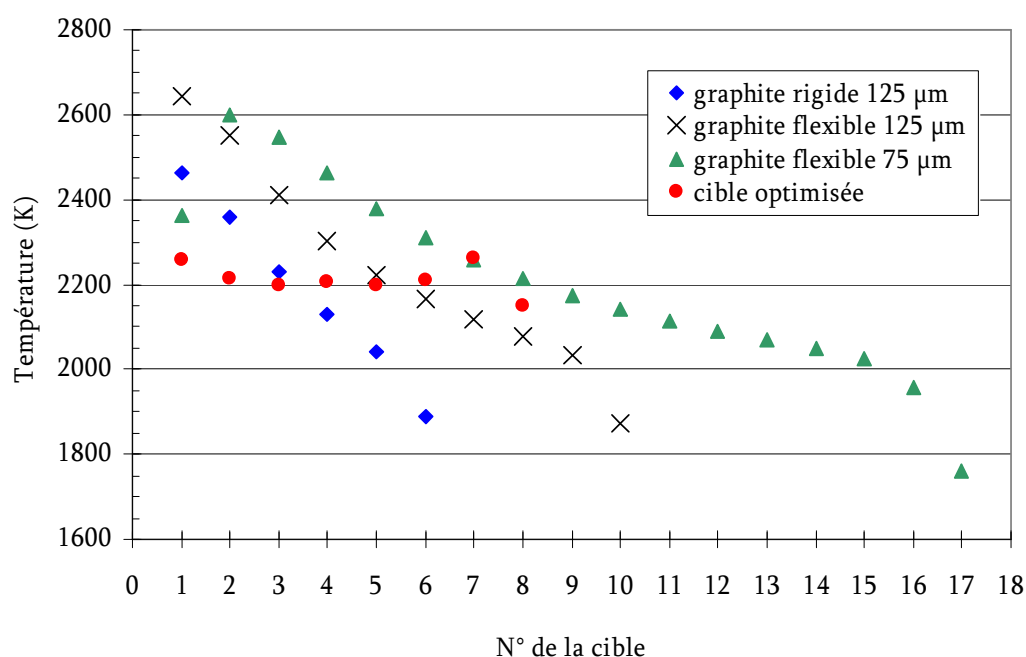


Fig. 42 _ Température maximale de chaque disque de la cible pour une intensité de 1 mA $d^3\text{He}$ et pour différents types de cibles.

Cette optimisation a permis de diminuer la température maximale de la cible de manière conséquente (diminution respective de 200 et 400 K par rapport à la cible de graphite rigide et de graphite flexible). La température des différents

disques est plus régulière, l'écart entre le disque le plus chaud et le plus froid n'est que de 100 K. La température maximale de la cible est de 2260 K, cette valeur est très proche des 2300 K calculés dans les mêmes conditions pour la cible inclinée (voir la partie 4.4.2).

4.4.3.3. Influence de l'émissivité du conteneur.

Une série de calculs est effectuée pour la cible optimisée en faisant varier l'émissivité de la paroi intérieure du conteneur. L'intensité du faisceau est fixée à 1 mA. On fait varier l'émissivité de 0,1 (cuivre recuit) jusqu'à 0,85 (cuivre avec un dépôt de carbone). Les résultats sont présentés sur le graphique ci-dessous (Fig. 43). Il illustre très clairement l'importance d'un traitement de surface pour augmenter l'émissivité du conteneur. En effet, la température maximale de la cible diminue de 740 K en passant d'une émissivité de 0,1 à 0,85.

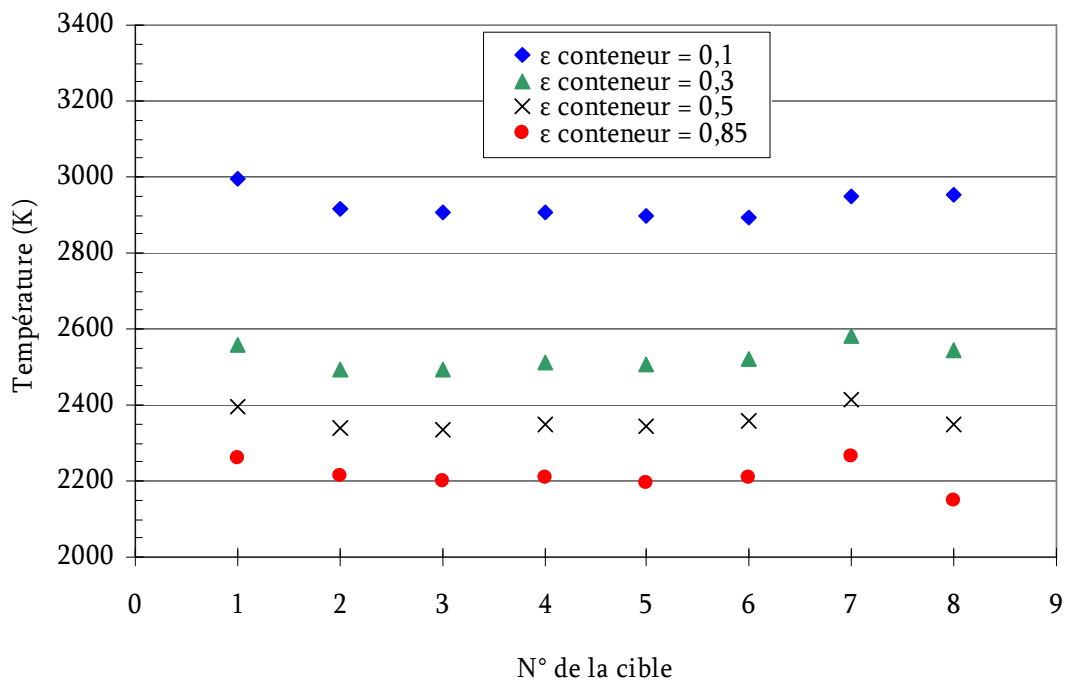


Fig. 43 _ Evolution de la température maximale des différents disques de la cible en fonction de l'émissivité du conteneur pour 1 mA de faisceau primaire.

4.4.3.4. Influence de la taille et forme du faisceau.

Les simulations précédentes ont toutes été réalisées avec un faisceau plat de 4 cm de rayon. Mais comment évolue la température si l'on considère une forme gaussienne ou un faisceau moins défocalisé ? La température de la cible est calculée pour un faisceau plat de rayon 2 cm et un faisceau gaussien ($\sigma = 2,5$ cm c'est-à-dire LMH ≈ 6 cm). Elle est comparée à la température obtenue dans le cas

du faisceau plat de rayon 4 cm utilisé jusqu'à présent. Les simulations sont menées pour une intensité de 1 mA et les résultats sont présentés sur le graphique ci-dessous (Fig. 44).

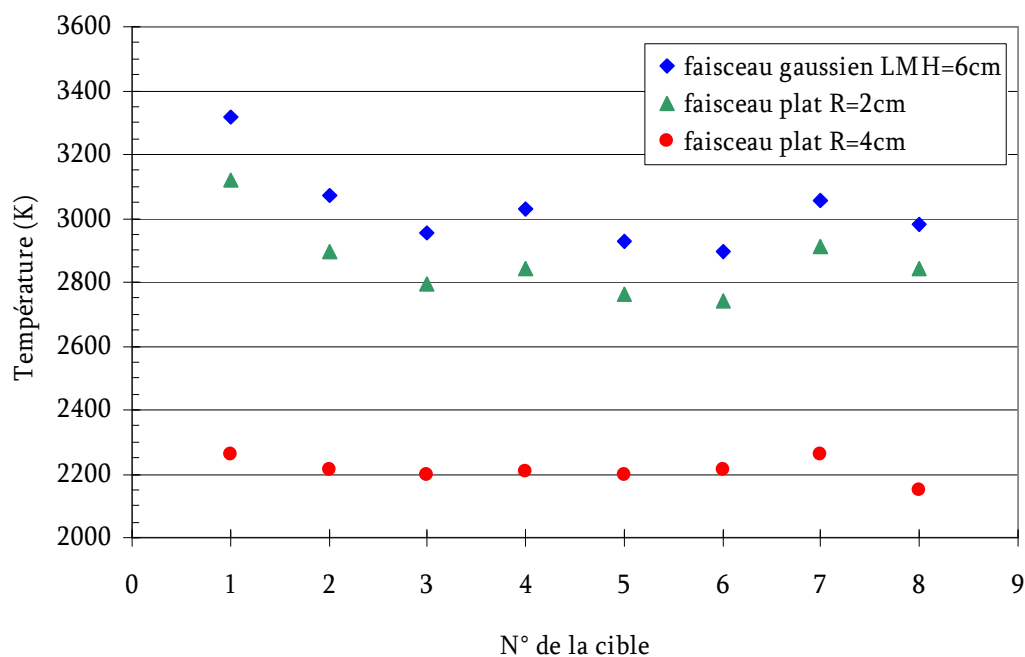


Fig. 44 _ Evolution de la température maximale des différents disques de la cible en fonction de la taille et de la forme du faisceau.

Il apparaît que la température de la cible augmente nettement lorsque le dépôt de puissance n'est pas homogène sur toute la surface de la cible. Pour pouvoir augmenter l'intensité d' ^3He envoyée sur la cible et ainsi le taux d' ^{14}O produit, il apparaît fondamental de pouvoir disposer d'un faisceau homogène se rapprochant le plus possible d'un faisceau plat. La défocalisation (ou vobulation) du faisceau jusqu'à un rayon maximum est primordiale.

4.4.4. Conclusions de l'étude thermique.

L'étude thermique sur le système de production d' ^{14}O permet d'affirmer que l'intensité maximale d' ^3He admissible par un tel système sera proche de l'intensité disponible (1mA). L'influence sur la température de la cible de nombreux paramètres a été étudiée. Cela permet d'établir les pistes à suivre lors de la conception du premier prototype. Les résultats marquants de cette étude sont les suivants :

- Dans le cas de la cible constituée d'un empilement de disques, l'utilisation du graphite rigide de 125 μm d'épaisseur semble la meilleure option d'un point de vue thermique.

- Il paraît important de noircir la face interne du conteneur afin d'augmenter son émissivité, les échanges de chaleur à haute température s'effectuant majoritairement par rayonnement.
- La forme du faisceau primaire est fondamentale. Il faut s'assurer que le faisceau soit le plus plat et le plus large possible.
- Les deux solutions présentées précédemment semblent conduire au même résultat d'un point de vue thermique. La réalisation de la cible inclinée semble moins complexe et donc plus fiable que la cible constituée d'un empilement.

4.5. Bilan de l'étude de la production d' ^{14}O .

Les différentes méthodes de production d'un faisceau d' ^{14}O d'autres installations de faisceaux d'ions radioactifs ont été examinées. Deux mécanismes réactionnels ont été dans un premier temps retenus : $^{14}\text{N}(\text{p},\text{n})^{14}\text{O}$ et $^{12}\text{C}({}^3\text{He},\text{n})^{14}\text{O}$. Au vu des estimations de taux de production et des moyens techniques à mettre en œuvre pour ces deux solutions, le bombardement d'une cible de carbone par un faisceau d'hélium a été choisi.

Néanmoins, les fonctions d'excitations trouvées dans la littérature, pour ce mécanisme réactionnel, ne sont pas cohérentes. Cela nous a incités à effectuer une nouvelle mesure de la section efficace de la réaction $^{12}\text{C}({}^3\text{He},\text{n})^{14}\text{O}$. Ces résultats ont permis de donner une estimation plus fiable du taux de production d' ^{14}O dans une cible de carbone épaisse. Pour un faisceau d' ${}^3\text{He}$ de 1 mA à 35 MeV, il est estimé à $2,2 \times 10^{11}$ pps.

Les expériences antérieures de conception de cible ISOL ont montré qu'il n'est pas évident de déposer une intensité de faisceau primaire de 1 mA à une énergie de 35 MeV sur une cible dont la section est limitée. Une étude thermique a donc été menée afin de guider la conception de la cible et de permettre de maximiser l'intensité du faisceau primaire utilisable.

Cette étude a permis de démontrer que l'intensité maximale d' ${}^3\text{He}$ admissible par la cible de production sera proche de l'intensité disponible (1mA). L'influence de nombreux paramètres sur la température de la cible a été simulée. Cette étude thermique permettra de guider la conception du premier prototype de cible pour la production d' ^{14}O . Elle sera effectuée par le bureau d'étude mécanique du GANIL en collaboration avec le groupe « autres faisceaux-autres cibles ». Simultanément, de nouvelles simulations thermiques plus détaillées prenant en compte l'environnement de la cible ainsi que sa géométrie finale doivent être menées.

5. Production d' ^{15}O .

L'ensemble de production étudié pour l' ^{14}O pourra être utilisé sans modifications pour produire un faisceau d' ^{15}O . Il suffira d'envoyer sur la cible un faisceau primaire d' ^4He au lieu du faisceau d' ^3He utilisé pour produire l' ^{14}O . Le graphique (Fig. 45) présente la comparaison des parcours des deux isotopes dans un carbone de densité $1,8 \text{ g.cm}^{-3}$. L'énergie du faisceau d' ^4He devra être de 40 MeV pour que son parcours soit identique à celui de l' ^3He à 35 MeV.

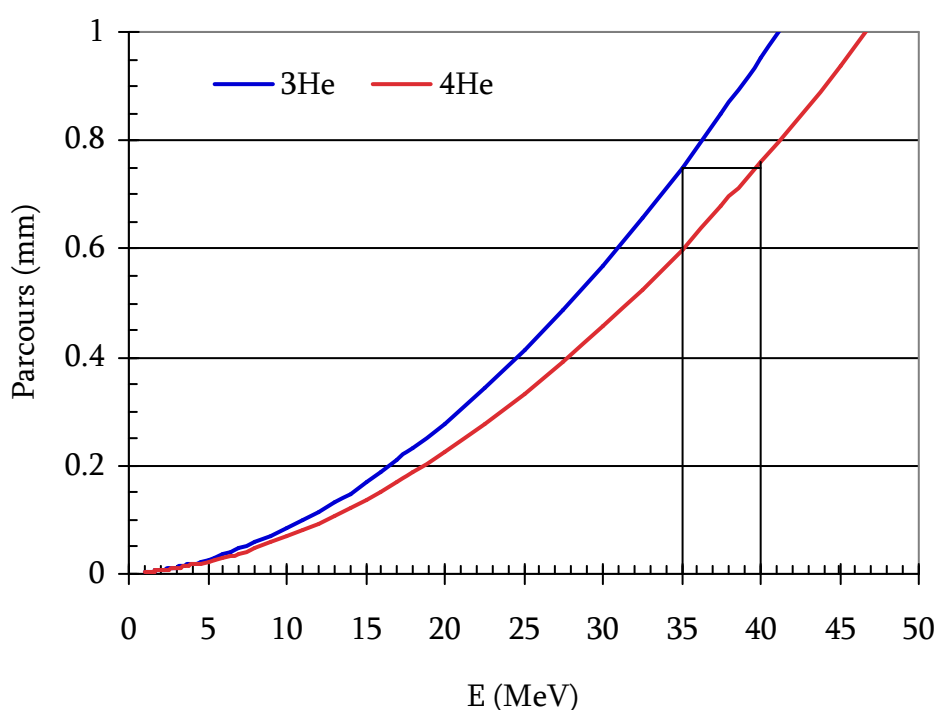


Fig. 45 _ Graphique présentant le parcours des faisceaux d' ^3He et d' ^4He dans du carbone ($1,8 \text{ g.cm}^{-3}$) en fonction de l'énergie.

Il n'existe qu'une seule mesure de la section efficace de production de l' ^{15}O par la réaction $^{12}\text{C}(^4\text{He},n)$ [144]. L'énergie maximale du faisceau d' ^4He au cours de cette mesure est de 22,7 MeV. La comparaison de cette mesure avec les valeurs données par le code PACE4 et la base de données EAF-07 est présentée ci-dessous (Fig. 46). Ce graphique illustre le manque de mesures expérimentales pour cette réaction pour une énergie supérieure à 22,7 MeV. Le taux de production dans la cible estimé à partir de la fonction d'excitation de la base de donnée EAF-07 est de $1,1 \times 10^{12}$ pps par mA de faisceau primaire (valeur optimiste au vu de la seule mesure existante).

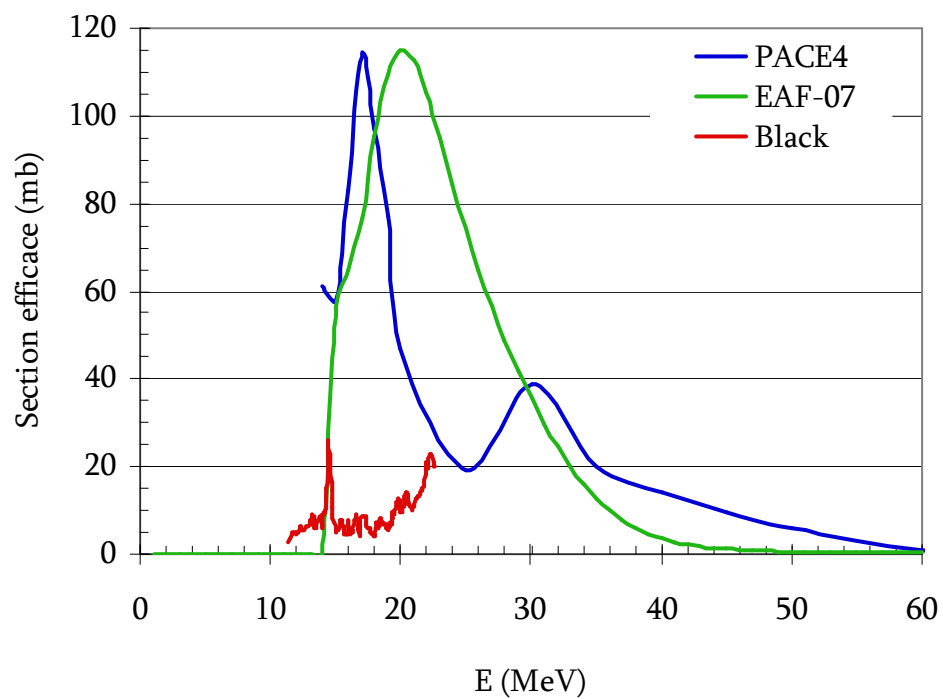


Fig. 46 _ Comparaison des fonctions d'excitation de la réaction $^{12}\text{C}(^4\text{He},n)^{15}\text{O}$ données par Black [144], la base de donnée EAF-07 et le code PACE4 .

6. Conclusions et perspectives.

Le travail réalisé au sein du groupe de travail « autres faisceaux-autres cibles », présenté dans cette thèse, constitue une véritable opportunité pour diversifier les faisceaux qui seront délivrés par SPIRAL 2. Le but est d'étendre la palette des faisceaux produits à des éléments plus légers que ceux issus des fissions de l'uranium.

Le développement de deux « autres » faisceaux a motivé les études présentées dans ce chapitre.

Du côté riche en neutrons, nos efforts se sont concentrés sur la production d'un faisceau de ^{15}C . Il pourrait être produit dans une cible d'oxyde par réaction avec les neutrons issus du convertisseur de SPIRAL 2. Selon le type d'oxyde choisi, de nombreux autres éléments peuvent être produits. Des calculs ont été effectués à partir de la convolution du flux de neutron mesuré expérimentalement par des sections efficaces issues du code (PACE 4), de base de données de simulation (EAF-07) ou de résultats expérimentaux [36]. Ces valeurs ont été comparées aux résultats de simulations MCNPx. Une revalorisation de l'installation SPIRAL 1 est envisagée avant la mise en service de SPIRAL 2. Les taux de production estimés avec SPIRAL 1 sont compétitifs avec ceux de SPIRAL 2 pour un tel faisceau. Par conséquent, l'étude de la production du ^{15}C avec SPIRAL 2 est mise en suspens.

Du côté déficient en neutrons, le développement d'un faisceau d' ^{14}O est motivé par des applications en astrophysique. Différentes méthodes de production de l' ^{14}O ont été envisagées. Celle mettant en jeu le mécanisme réactionnel $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ a été choisie. Les désaccords sur la fonction d'excitation de cette réaction ont été levés par une expérience. Un résultat parallèle de cette expérience est la mesure de la section efficace de production de ^{10}C . Mais, cette expérience a surtout permis d'estimer le taux de production d' ^{14}O en cible épaisse à $2,2 \times 10^{11}$ pps, pour un faisceau d' ^3He de 1 mA à 35 MeV. Une étude thermique a été réalisée apportant les éléments nécessaires à la conception de la cible de production. Elle permet de comprendre l'influence de nombreux paramètres tels que le type de matériau utilisé, la taille et la forme du faisceau sur la température de la cible. Ces simulations indiquent que l'intensité maximale de faisceau primaire admissible par un tel système de production est proche de l'intensité qui sera disponible (1mA). Cela conduirait à un taux de production d' ^{14}O 140 fois plus élevé qu'avec SPIRAL 1. La cible de production pourra être utilisée telle quelle pour produire un faisceau d' ^{15}O à partir de la réaction $^{12}\text{C}(^4\text{He},n)^{15}\text{O}$. Les éventuelles disparités d'intensité des faisceaux d' ^3He et ^4He délivrés par le LINAC devront être compensées par un travail sur la forme du faisceau. La prochaine

étape consiste à concevoir un système de production basé sur la cible déduite de cette étude.

Chapitre 2

Développement d'un ECS dédié aux faisceaux d'ions alcalins

1. Introduction.

Les fissions créées dans la cible de carbure d'uranium de SPIRAL 2 conduisent entre autres à la production d'isotopes d'alcalins et d'alcalino-terreux. Les espèces ainsi produites sont majoritairement les isotopes du rubidium, du césium, du strontium et du baryum. Une source à ionisation de surface est généralement utilisée pour transformer ces atomes à faible potentiel de première ionisation en ions. Son principe est basé sur le contact d'un atome avec une surface à fort travail de sortie. La différence entre le potentiel de première ionisation et le travail de sortie détermine la probabilité qu'aura l'atome d'être ionisé lorsqu'il quittera la surface. En augmentant la température de la surface, le temps de résidence des atomes sur la surface décroît, et la probabilité d'ionisation est modifiée. L'efficacité d'une telle source dépend donc de nombreux paramètres : la température de la surface ionisante, le travail de sortie de l'électron de cette surface, le potentiel de première ionisation de l'élément d'intérêt, son temps de résidence sur la paroi, la géométrie du système ioniseur, l'état de surface mécanique, le degré de pollution chimique et le champ électrique perçu par les ions (cette liste n'est pas exhaustive).

La source à ionisation de surface de SPIRAL 2 devra remplir un certain nombre de critères. Les premiers sont assez classiques pour une source dédiée à la production d'ions radioactifs : une haute efficacité, une bonne sélectivité, un temps de réponse rapide et une conception fiable. D'autres sont liés aux contraintes spécifiques de l'exploitation de cette source dans le cadre du projet SPIRAL 2. Cette source doit fonctionner pendant trois mois consécutifs, avec des performances, si possible, pérennes. D'autre part, pendant cette période, son

association à une cible de carbure d'uranium portée à haute température (2000°C) ne doit pas entraîner de dégradation de ses performances.

Pour répondre à ces attentes, il est nécessaire d'effectuer une étude globale sur les sources à ionisation de surface. Tout d'abord, quelques notions fondamentales à la compréhension des sources à ionisation de surface sont présentées : étude du phénomène d'ionisation de surface, revue des différentes sources à ionisation de surface utilisées à travers le monde et réflexion sur le choix des matériaux à employer pour la source de SPIRAL 2. Par la suite, une source de test, SISTHE (Source à Ionisation de Surface de Test Hors Exploitation), a été utilisée afin de mieux comprendre et caractériser l'influence de certains paramètres (champ électrique, température, nature du matériau ionisant...) sur les performances de cette source. Les résultats obtenus ont permis de développer le premier prototype de source à ionisation de surface pour SPIRAL 2. Les premiers essais de ce prototype sont présentés à la fin de ce chapitre.

2. Quelques notions sur l'ionisation de surface.

2.1. Principe de fonctionnement d'une SIS.

Le principe d'une source à ionisation de surface (SIS) repose sur la capacité d'une surface chaude à échanger un électron avec un atome qui entre en contact avec cette paroi. De cette manière, ce type de source permet de produire des ions mono-chargés positifs ou négatifs. Dans le cadre de cette étude nous nous intéresserons au cas où l'atome fournit un électron à la paroi, c'est-à-dire à la production d'ions positifs.

Ces sources sont couramment utilisées pour produire des faisceaux d'alcalins et d'alcalino-terreux car ces groupes d'atomes présentent un faible potentiel de première ionisation ($I < 5,4$ eV pour les alcalins). Leur dernière couche électronique ne comporte qu'un ou deux électrons (respectivement alcalins et alcalino-terreux) dont l'énergie de liaison est faible. Ils perdent plus facilement ces électrons pour passer dans un état ionisé dans lequel leur dernière couche électronique sera pleine.

Les processus fondamentaux gouvernant l'ionisation de surface ont été largement discutés dans la littérature [145-157]. Quelques éléments permettant d'appréhender les phénomènes ayant lieu dans une telle source sont présentés dans cette partie.

2.1.1. Eléments de théorie.

Un plasma se forme à proximité de la surface portée à haute température. A l'équilibre thermique (même température pour les atomes et les ions), le rapport des densités d'ions, d'électrons et d'atomes (respectivement n_i , n_e et n_o) est décrit par la loi d'Eggert-Saha [158].

$$\frac{n_e n_i}{n_o} = \frac{2g_i}{g_o} \left(\frac{2\pi \cdot m_e \cdot k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \cdot e^{-\frac{I}{k_B T}} \quad (26)$$

g_i et g_o représentent les poids statistiques de l'ion et de l'atome (pour les alcalins, $g_o/g_i = 2$) et I le potentiel de première ionisation des atomes. Les électrons proviennent de l'émission thermoionique de la surface chaude. Leur densité à la surface est donnée par la loi de Richardson où Φ représente le travail de sortie de l'électron de la paroi. Les indices « s » et « v » utilisés dans la suite désignent respectivement les quantités dans une région proche de la surface ou dans le volume loin de la surface.

$$n_{es} = 2 \cdot \left(\frac{2\pi \cdot m_e \cdot k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \cdot e^{-\frac{\Phi}{k_B T}} \quad (27)$$

Il est alors possible de déduire des équations (26) et (27) l'équation (28) dite de Langmuir [159], donnant l'expression de la probabilité d'ionisation par contact.

$$P_+ = \frac{n_{is}}{n_{os} + n_{is}} = \frac{1}{1 + \frac{g_o}{g_i} \cdot e^{-\frac{I-\Phi}{k_B T}}} \quad (28)$$

Pour des alcalins et une température infinie, P_+ tend vers 1/3. Pour des combinaisons atome/surface ionisante pour lesquelles $I < \Phi$ (respectivement $I > \Phi$), cette probabilité vaut 1 (respectivement 0) à température nulle.

2.1.2. Les sources à cavité chaudes.

Expérimentalement, il a été démontré que l'efficacité d'ionisation de certaines sources dites à cavité chaude pouvait être supérieure de plusieurs ordres de grandeur à la probabilité d'ionisation par contact, pourtant seul phénomène originel [145,146]. Ces sources sont constituées d'une cavité qui doit être portée à très haute température (supérieures à 2200 K) et dont l'orifice d'extraction doit

être négligeable par rapport à la surface de la cavité. Le plasma créé à l'intérieur de la cavité est alors dans un quasi équilibre thermique. Les électrons émis par la surface chaude créent un potentiel négatif au centre de la cavité Φ_p qui assure le confinement des ions produits par ionisation de surface. Le rapport de la densité d'ions sur la densité d'atomes dans le plasma (r_v) est relié à ce même rapport sur la surface (r_s) par la relation suivante (29) permettant de définir le facteur d'amplification du degré d'ionisation N_{TE} :

$$N_{TE} = \frac{r_v}{r_s} = e^{\frac{-e\phi_p}{k_B T}} \quad (29)$$

L'efficacité d'ionisation dans le volume η s'exprime alors en fonction de la probabilité d'ionisation par contact P_+ et du facteur d'amplification N_{TE} (30).

$$\eta = \frac{P_+ \cdot N_{TE}}{1 - P_+ \cdot (1 - N_{TE})} \quad (30)$$

Il a été démontré expérimentalement que ce facteur d'amplification était dans certains cas surestimé [146]. En effet, cette description s'applique au cas d'un plasma en équilibre thermodynamique qui ne peut avoir lieu qu'au sein d'une cavité fermée. Dans son article, Kirchner [146] présente une description de cet effet en régime non équilibré.

2.1.3. Les sources à extraction électrostatique.

La technique de cavité chaude requiert des températures de fonctionnement généralement élevées qui contribuent à une réduction de l'espérance de vie de la source. Une autre méthode permet de diminuer la probabilité de neutralisation sur les parois de la source et d'obtenir une efficacité d'ionisation totale supérieure à la probabilité d'ionisation par contact, sans nécessiter une température de fonctionnement aussi élevée que celles des cavités chaudes. Elle consiste à guider les ions vers la sortie de la source à l'aide d'un champ électrique.

Deux méthodes sont employées pour favoriser l'extraction des ions avec un champ électrique.

La plus courante consiste à placer une électrode d'extraction polarisée négativement (quelques dizaines de kilovolts) par rapport à la sortie de la source. Le champ électrique ainsi créé pénètre dans la source et facilite l'extraction des ions. Toutefois, cet effet est limité car il n'intervient que dans une zone proche de l'extraction de la source.

L'autre méthode consiste à appliquer un champ électrique à l'intérieur du tube ioniseur en faisant circuler un courant important dans sa section ce qui permet simultanément son chauffage par effet Joule [160]. Le ioniseur est généralement constitué d'un tube. La résistance électrique au passage du courant dans ce tube est donnée par la formule suivante (31) dans laquelle ρ représente la résistivité électrique du matériau, l la longueur du tube et S la section de passage du courant.

$$R = \frac{\rho \cdot l}{S} \quad (31)$$

En utilisant des matériaux présentant une résistivité électrique élevée et une section de passage du courant la plus faible possible, il est possible d'obtenir un champ électrique supérieur à 1 V.cm^{-1} dans le tube.

Les descriptions analytiques présentées pour décrire les sources à cavités chaudes ne peuvent être utilisées pour les sources à extraction électrostatique. Au début de cette thèse, un programme Monte Carlo a donc été conçu pour rendre compte des processus successifs intervenant dans ce type de source. A partir des caractéristiques des atomes injectés et de paramètres d'entrée sur la nature et géométrie du tube, il permet d'accéder à de nombreux résultats. Ainsi, il est possible de calculer la proportion d'ions et d'atomes qui sortent du tube par chacune de ses extrémités, le temps de vol et le nombre de collisions effectuées avant la sortie du tube (sous forme ionique ou atomique) et le lieu de la dernière collision. L'annexe 2.1 présente plus de détails sur ce code, en particulier : son principe de fonctionnement, sa validation dans des cas limites ainsi que quelques résultats. Le script du code peut être envoyé sur simple demande du futur utilisateur.

Le graphique (Fig. 47) montre un exemple de résultat qu'il est possible d'obtenir avec ce code. Il présente l'évolution de l'efficacité d'ionisation du tube en fonction de la probabilité d'ionisation par contact P_+ pour différentes valeurs de champ électrique. Ces calculs ont été réalisés pour une géométrie de tube ioniseur relativement standard et correspondant au tube de SISTHE (voir partie 3), c'est à dire pour un tube de 3 cm de long et de 4 mm de diamètre. Les atomes sont injectés à l'entrée du tube.

L'efficacité d'ionisation du tube est calculée par le rapport du nombre d'ions en sortie du tube sur le nombre d'atomes injectés dans le tube. Les efficacités minimum et maximum qu'il est possible de calculer correspondent aux cas suivants :

- Cas 1 : Les éléments injectés dans le tube qui **sortent par l'entrée** du tube sont perdus. L'efficacité d'ionisation est minimale. Ce cas correspond à un tube seul, sans possibilité de retour des atomes, ou à un tube relié à une cavité cible pour des atomes de durée de vie suffisamment courte pour que leur probabilité de retour dans le tube après effusion dans la cavité soit négligeable.

- Cas 2 : Tous les éléments injectés dans le tube **sortent par la sortie** du tube. L'efficacité est maximale. Ce cas correspond à un tube relié à une cavité cible fermée pour des éléments stables.

Dans le cas de SISTHE, le tube est connecté à une cavité partiellement ouverte. Chaque élément présent dans la cavité a donc une probabilité inférieure à 1 d'atteindre l'entrée du tube ioniseur. Nous avons donc choisi de présenter sur le graphique ci-dessous (Fig. 47) les valeurs d'efficacité minimales.

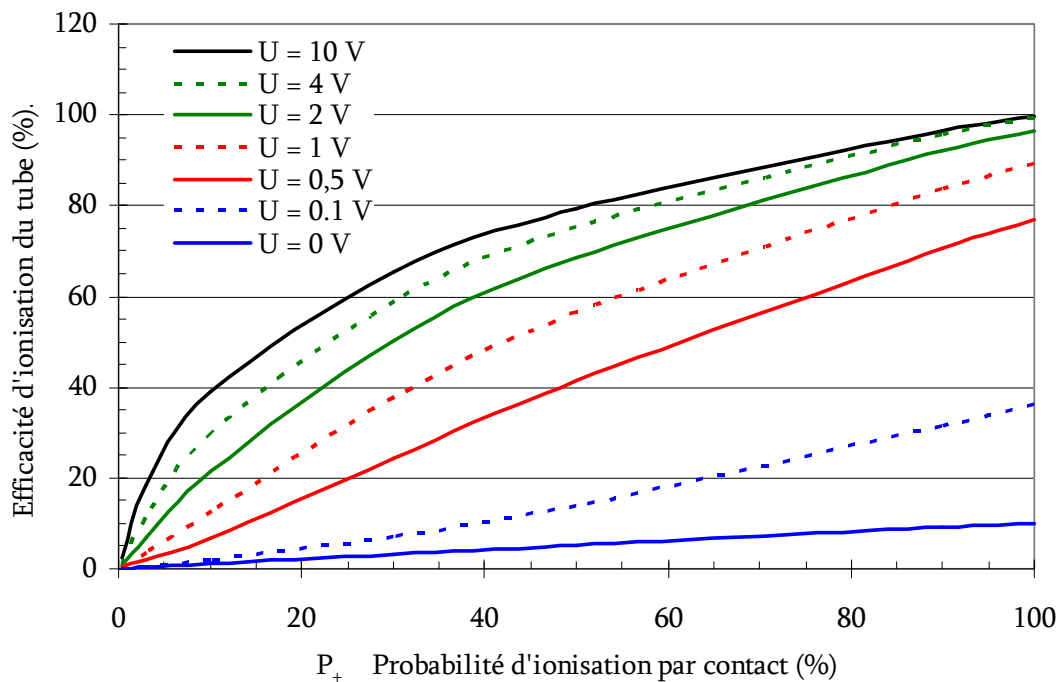


Fig. 47 _ Evolution de l'efficacité d'ionisation du tube en fonction de la probabilité d'ionisation par contact pour différentes valeurs de champ électrique. Ces calculs ont été réalisés pour un tube de 3 cm de long et de 4 mm de diamètre.

Dans ces conditions de calcul, il apparaît que le gain, par rapport à l'efficacité d'ionisation du tube sans champ électrique (courbe $U = 0\text{ V}$), devient conséquent pour un champ électrique de l'ordre de 1 V.cm^{-1} . Ce gain est d'autant plus important que la probabilité d'ionisation par contact P_+ est faible.

2.1.4. Quelle technologie pour la source de SPIRAL 2 ?

La frontière entre les deux types de sources décrits précédemment (cavité chaude, extraction électrostatique) peut être floue. La conception de certaines sources permet d'obtenir la conjugaison de plusieurs effets décrit plus haut.

Les sources à cavité chaudes fonctionnent à des températures supérieures à ~2200 K. Cette gamme de températures est critique pour bon nombre de matériaux. Les contraintes mécaniques dues aux dilatations thermiques augmentent. L'évaporation de certains matériaux comme le graphite devient importante (voir la présentation de L. Tecchio lors de la SPIRAL 2 Week de 2009 [143]). Ces conditions de fonctionnement semblent difficilement conciliables avec la durée de vie de 3 mois de l'ECS (Ensemble Cible Source) requise pour le projet SPIRAL 2. Par conséquent, nous nous orienterons vers une source à extraction électrostatique afin de limiter la température de fonctionnement.

2.2. Revue des SIS de par le monde.

Utilisées en ligne pour la première fois en 1967 [161], les sources à ionisation de surfaces sont devenues un instrument courant et incontournable des installations de production de faisceaux d'ions radioactifs. Cette revue, non exhaustive, présente les nouveaux dispositifs installés et les dernières avancées réalisées dans le domaine. Nous nous limiterons au cas des sources d'ions positifs utilisées en ligne.

2.2.1. ISOLDE

A ISOLDE [35] (CERN, Genève), la source MK-1 est constituée d'un tube de 3 cm de long (diamètres int./ext. = 3/5 mm) placée à l'extrémité d'un tube de transfert le reliant à la cible [162,163]. Ce tube est chauffé par effet Joule à l'aide d'un courant de 120 à 400 A. Différents matériaux et températures de fonctionnement sont utilisés en fonction de l'élément à ioniser et afin d'optimiser la sélectivité. Ainsi, le tantale, le tantale recouvert d'une feuille de rhénium et le tungstène ont été testés à des températures de fonctionnement allant de 1000 à 2400°C. Pour le tube de tungstène placé à très haute température (2400°C), la source fonctionne en régime de cavité chaude.

2.2.2. IPNO

A l'IPNO [142], une source à ionisation de surface constituée d'un tube en rhénium recouvert d'une couche de 10 µm d'iridium a été développée afin de produire un faisceau de gallium sur l'installation ALTO [164]. Des tests ont été réalisés en stable et des courants de 100 nA de gallium ont été mesurés en sortie de séparateur. Le tube a fondu à une température de 1800°C. Cette température de

fusion plus basse que prévue est attribuée à la contamination du tube par des impuretés pouvant conduire à un point de fusion eutectique.

2.2.3. PNPI

Sur l'installation IRIS [165] (PNPI, Gatchina), de nombreuses sources à ionisation de surface hybrides ont été utilisées [166-169]. Parmi celles-ci, on peut citer la source SEBLIS composée d'un tube de tungstène de 3,5 cm de long et de 3 mm de diamètre chauffé entre 2100 et 2500°C. Cette source permet différents modes de fonctionnement : ionisation de surface, ionisation laser, ionisation par bombardement électronique. La source CTIS constitue un système où cible de production et source d'ionisation sont combinées. Le matériau du conteneur cible est remplacé par du tungstène chauffé à environ 2500°C ce qui permet d'ioniser les atomes directement dans le volume cible. Sur ces ensembles, des tests ont été effectués en appliquant un champ magnétique axial de l'ordre de 500 à 800 G pour confiner les ions au centre du tube, et des gains d'un facteur 20 ont été observés pour les éléments à faible potentiel d'ionisation.

2.2.4. JAEA

A TRIAC [170] (JAEA, Ibaraki), une source à ionisation de surface a été développée très récemment [171,172]. L'ensemble est très compact puisque la cible de production est directement reliée au tube ioniseur. La surface intérieure du tube est recouverte d'une feuille de rhénium de 50 μm , et il est chauffé à 2100°C par bombardement électronique.

2.2.5. ORNL

Une source d'ionisation de surface à la fois négative et positive a été développée pour l'installation HRIBF (ORNL, Oak Ridge). Deux méthodes ont été employées pour rendre la source réversible. La première consiste à utiliser un tube ioniseur interchangeable [173]. Ainsi le molybdène, le tantale et le tungstène ont été utilisés pour l'ionisation positive alors que pour l'ionisation négative le LaB_6 qui possède un travail de sortie de l'électron faible ($\Phi = 2,36 \text{ eV}$) est employé. Une autre méthode consiste à utiliser un ioniseur en carbone très perméable (CBCF) recouvert d'une couche d'iridium [174]. Pour passer en ionisation négative, un flux de vapeur de césium gazeux est libéré de manière à former une fine couche à la surface de l'iridium qui permet de diminuer son travail de sortie (en théorie il serait possible de passer de 5,29 eV à 1,43 eV).

2.2.6. TRIUMF

Sur l'installation ISAC [44] (TRIUMF, Vancouver), une des premières sources à avoir été utilisée est une source à ionisation de surface [175-177]. La dernière

version est constituée de deux tubes de Ta concentriques reliés par un disque côté extraction. Ils sont chauffés par effet Joule à une température de 2200°C. La zone de l'extraction de la source présente une symétrie axiale, ceci afin de minimiser toute inhomogénéité du champ magnétique dans cette région. C'est la géométrie fixe du système d'extraction qui est à l'origine de ce développement. En effet, il n'aurait pas été possible de corriger les aberrations du faisceau d'ion, éventuellement engendrées par les inhomogénéités du champ magnétique, en déplaçant le système d'extraction.

2.2.7. GANIL

Au GANIL [14] (Caen), la source MonoNaKe a été développée afin d'étendre la palette de faisceaux disponibles avec SPIRAL 1. La source est constituée d'un tube ioniseur en carbone de 2 cm de long, de 4 mm de diamètre intérieur et d'épaisseur 1 mm. Il est connecté directement au conteneur cible et est chauffé par effet Joule. La faible section de passage du courant ainsi que la forte résistivité du carbone permet de créer un champ électrique important à l'intérieur du tube ioniseur (de l'ordre de 1 V.cm⁻¹) [160].

Le projet SPIRAL 2 [17] en cours de réalisation au GANIL nécessite le développement d'une nouvelle source à ionisation de surface répondant à des contraintes spécifiques, ce nouveau développement fait l'objet de ce chapitre.

2.3. Etude sur le choix des matériaux pour une SIS.

Nous avons mené une étude comparative des différents matériaux susceptibles d'être utilisés pour le tube ioniseur et le tube de transfert de la source à ionisation de surface de SPIRAL 2. Des études similaires ont déjà été menées expérimentalement par H. Kawano [178]. Les matériaux recherchés doivent présenter un certain nombre de caractéristiques permettant un fonctionnement optimal de la source. Parmi celles-ci nous pouvons citer la tenue à haute température (matériaux réfractaires), une résistivité électrique élevée, le travail de sortie des électrons qui doit être élevé et une faible réactivité aux polluants issus d'une cible d'UCx. Cette étude est présentée en détails en annexe 2.2. Le carbone et le rhénium apparaissent comme les meilleurs matériaux pour réaliser notre source à ionisation de surface à extraction électrostatique. C'est donc ces deux matériaux qui sont retenus pour effectuer les tests suivants.

3. Etude du dispositif SISTHE.

3.1. But du dispositif.

SISTHE est une Source à Ionisation de Surface de Test Hors Exploitation. Cette source, vouée à l'étude de l'ionisation de surface, doit permettre d'acquérir

une maîtrise du principe et de sa mise en œuvre indispensable au développement d'une future source à ionisation de surface pour le projet SPIRAL 2. Ce dispositif permet de quantifier l'effet de nombreux paramètres sur les performances de la source à ionisation de surface. Parmi ceux-ci on peut citer la température, le champ électrique appliqué à l'intérieur du tube ioniseur, la nature du matériau ionisant et le flux d'alcalins à ioniser. Ces paramètres sont primordiaux et c'est leur importance respective qui a guidé le développement du prototype de la source à ionisation de surface pour SPIRAL 2. Le dispositif aura aussi permis de mesurer le temps de résidence des alcalins sur le carbone à différentes températures. Cette donnée est essentielle car elle permet d'estimer le temps d'effusion des éléments produits dans la cible de SPIRAL 2 vers la source.

Après quelques considérations générales sur les mesures d'efficacité, la méthode mise en place sur SISTHE sera présentée en détails. Les résultats obtenus sont présentés à la fin de cette partie. Ils ont fait l'objet d'une publication [22].

3.1.1. Principe général.

De manière générale, pour effectuer une mesure d'efficacité de transformation d'atomes en ions dans une source, un flux d'élément F_{inj} est injecté à l'entrée de cette source. En sortie, un flux d'ions F_{ext} produit par la source est extrait et mesuré. L'efficacité totale de la source s'exprime simplement par le rapport de ces deux flux :

$$\varepsilon = \frac{F_{ext}}{F_{inj}} \quad (32)$$

Pour que la mesure soit transposable à l'ionisation d'atomes radioactifs, il est nécessaire de connaître le temps de transformation des atomes en ions pour déterminer les pertes induites par la décroissance radioactive des ions.

Des mesures d'efficacité et de temps de réponse seront réalisées sur le dispositif SISTHE. Les alcalins qui sont les éléments étudiés avec le dispositif SISTHE sont condensables. La mesure du temps de réponse de la source nécessite l'utilisation d'un système permettant de pulser l'injection des alcalins.

3.1.2. Méthodes de mesure du flux injecté.

La principale cause d'erreur sur la détermination de l'efficacité réside dans la mesure précise du flux injecté dans la source, le courant électrique délivré par la source étant facile à mesurer. L'injection des alcalins dans la source peut se faire sous forme atomique, mais aussi sous forme ionique, si cela ne modifie pas la valeur de l'efficacité.

Une méthode envisageable consiste à utiliser un creuset délivrant un flux d'atomes. La mesure de masse de l'échantillon placé dans le creuset effectuée

avant et après évaporation peut fournir une indication de la masse totale évaporée et donc du flux total. Pour caractériser le flux évaporé dans une direction donnée, un cristal piézoélectrique en quartz [179] peut être placé face à la source d'évaporation. Néanmoins, cette méthode présente de nombreuses difficultés de mise en œuvre. La température de fonctionnement de ce type de cristal est inférieure à 100°C. En cours d'expérience, les conditions de fonctionnement doivent être les mêmes qu'en cours de calibration car le contrôle direct du flux instantané semble difficile à mettre en œuvre. Il faut donc que le remplacement du système de calibration par le dispositif à tester ne modifie pas les conditions de fonctionnement.

Une seconde possibilité consiste à injecter des ions, ceux-ci peuvent provenir d'un accélérateur d'ions stables ou radioactifs. Dans ce cas, il est aisé de pulser le faisceau afin de mesurer le temps de réponse du système. Ce type de méthode est appliqué à des ensembles de production composés d'une cible de production et d'une source. L'énergie élevée des ions permet de les faire pénétrer profondément dans la matière et ainsi obtenir des résultats qui tiennent compte de l'ensemble des processus de la méthode ISOL. Ces techniques permettent d'accéder à l'efficacité et au temps de réponse global du système qui prend en compte tous ces processus successifs. Pour connaître la contribution de chacun de ces processus il est nécessaire de s'appuyer sur des modèles théoriques, des simulations et/ou sur d'autres mesures.

En implantant un faisceau dans la cible de production à des énergies inférieures à la barrière coulombienne, la probabilité de réaction du faisceau avec la cible est très faible. En mesurant la quantité de la même espèce d'ions transmis en sortie de l'ensemble de production, il est possible d'accéder à la mesure des processus de diffusion, d'effusion et d'ionisation. Cette méthode peut être employée avec des ions stables [180] mais aussi avec des ions radioactifs [181]. La détection des ions radioactifs, bien plus sensible que celle des ions stables, permet de limiter l'intensité injectée et de s'affranchir du chauffage de la cible par le faisceau incident.

Pour des énergies du faisceau incident plus importantes, des éléments radioactifs sont produits dans la cible. Il est alors possible de mesurer en sortie du système de production l'intensité du faisceau d'ions radioactifs [51]. Cette méthode permet d'accéder à la mesure des processus de production, de diffusion, d'effusion et d'ionisation.

3.1.3. Méthode utilisant un canon à ion.

Une troisième méthode consiste à utiliser un faisceau d'ions à basse énergie (≈ 1 keV). Un faisceau d'ions alcalins stables, délivré par un canon à ions, a été utilisé pour mesurer l'efficacité de transformation atomes-ions dans le tube

ioniseur de la source SISTHE [182]. Ce canon à ions est inspiré de celui qui a été réalisé au LPC-Caen [183]. En effet, pour étudier l'ionisation de surface et le collage des alcalins, il est important que les alcalins injectés ne pénètrent pas dans la matière donc que leur énergie incidente soit la plus faible possible. Celle-ci doit toutefois rester suffisamment importante pour que le transport du faisceau d'ions reste maîtrisable à l'aide de systèmes électrostatiques conventionnels (donc par expérience de l'ordre d'1 keV). L'utilisation d'un canon à ions permet de répondre à ces critères et de mesurer précisément le flux d'ions alcalins injecté en temps réel. En pulsant ce flux, il est possible de mesurer le temps de réponse du système. Enfin, grâce à la disponibilité d'émetteurs d'alcalins dans le commerce, cette méthode présente l'avantage d'être relativement simple à mettre en œuvre comparée à l'utilisation d'un faisceau issu d'un accélérateur de particules ou d'une source ECR (*Electron Cyclotron Resonance*) délivrant des ions métalliques.

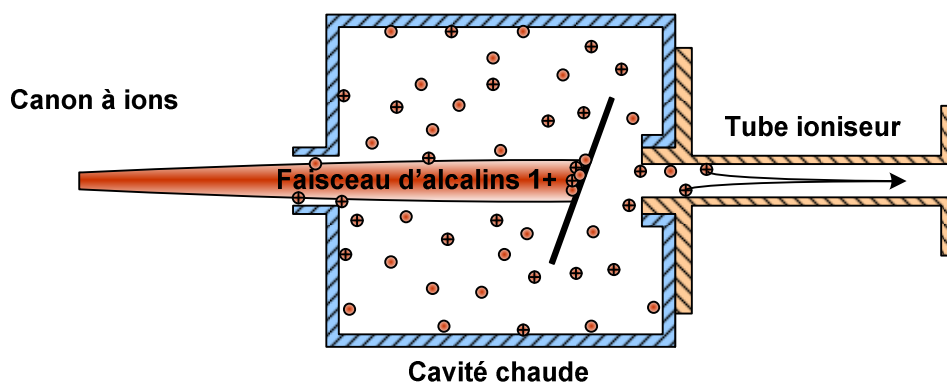


Fig. 48 _ Schéma de principe de la mesure. Un flux d'ions alcalins est injecté dans une cavité. Les ions sont stoppés sur une feuille de carbone. Sous l'effet de la chaleur, les alcalins effusent jusqu'à l'orifice arrière, auquel cas ils sont perdus, ou jusqu'à l'orifice d'entrée du tube ioniseur d'où ils ressortiront sous forme d'atomes ou d'ions.

Le principe de la mesure est présenté sur le schéma (Fig. 48). Elle est réalisée en injectant le faisceau d'ions alcalins dans une cavité située à l'entrée du tube ioniseur. Le faisceau de faible énergie (1 keV) est stoppé en surface d'une feuille placée dans la cavité (le parcours des atomes de lithium, sodium, potassium, rubidium et césium à 1 keV est respectivement de 18 nm, 3,4 nm, 1,7 nm, 0,9 nm et 0,8 nm dans du carbone de densité $1,1 \text{ g.cm}^{-3}$). Sous l'effet de la température élevée qui règne dans la cavité, les alcalins implantés se désorbent de la feuille et effusent dans la cavité. Ils peuvent alors sortir par l'orifice d'injection (côté canon à ions), auquel cas ils sont perdus, ou sortir par l'orifice d'entrée du tube ioniseur dans lequel ils pourront être ionisés puis extraits sous forme d'ions. Dans ce dernier cas, les ions sont accélérés et comptabilisés.

Si le matériau de la cavité et sa température permettent l'ionisation des atomes, les ions ainsi créés effuseront, tout comme les atomes, hors de la cavité puisque celle-ci est exempte de champ électrique. Si l'on admet :

- qu'un atome et qu'un ion ont la même probabilité de sortir sous forme d'ion à la suite d'un contact avec la paroi,
- et que la probabilité d'un atome et d'un ion de traverser le tube ioniseur sans en toucher la paroi est négligeable,

l'état de l'alcalin (neutre ou ionisé) en entrée du ioniseur n'influence pas l'efficacité d'ionisation du tube ioniseur. Ainsi, même si une partie des alcalins est ionisée dans la cavité, cela ne modifie pas le résultat de la mesure d'efficacité. Par un simple rapport de conductances ou par une simulation Monte Carlo (code RIBO [184]), il est aisé de déterminer la proportion d'atomes qui sort depuis la cavité vers le tube ioniseur. Si le flux total d'alcalins injecté F_{inj} dans la cavité est mesuré en ligne, on accède directement au flux d'atomes injecté dans le tube ioniseur F_{ion} par l'intermédiaire de ce rapport. Le calcul de ce rapport à partir des sections des deux orifices de la cavité indique que 31% des alcalins pénètrent dans le tube ioniseur. Les simulations effectuées à l'aide du code RIBO prédisent que ce sont 33% des alcalins qui sortent vers le tube ioniseur (les 67% restant s'échappent par l'orifice d'injection des ions). L'annexe 2.3 présente de plus amples détails sur les simulations effectuées à l'aide du code RIBO.

3.2. Description et caractérisation du dispositif expérimental.

La description et la caractérisation du dispositif expérimental s'articulent en deux parties reprenant la démarche chronologique qui a été suivie. Dans un premier temps, le fonctionnement du canon à ions seul a été validé, puis, il a été couplé au dispositif SISTHE. Une dernière partie présente les différents modes de fonctionnement du système.

3.2.1. Description du canon à ion.

La conception du canon à ion a pris en compte la possibilité d'utilisations multiples de cet outil. Il a été conçu pour pouvoir aisément s'adapter sur différents dispositifs moyennant une simple bride. Il a par exemple déjà été utilisé [185] avec le dispositif NanoNaKe [186].

Le canon à ion (Fig. 49) est composé de trois brides isolées électriquement entre elles. La première bride maintient un émetteur d'ions alcalins et son électrode d'extraction. La seconde constitue une lentille électrostatique. La dernière bride contient la coupelle de Faraday et permet d'effectuer le pompage dans l'enceinte. La coupelle de Faraday présente la même géométrie et la même position que la cavité de la source SISTHE par rapport au canon à ions.

Les émetteurs d'alcalins ont été fournis par la société HeatWave Labs [187], leur principe de fonctionnement est décrit en annexe 2.4.

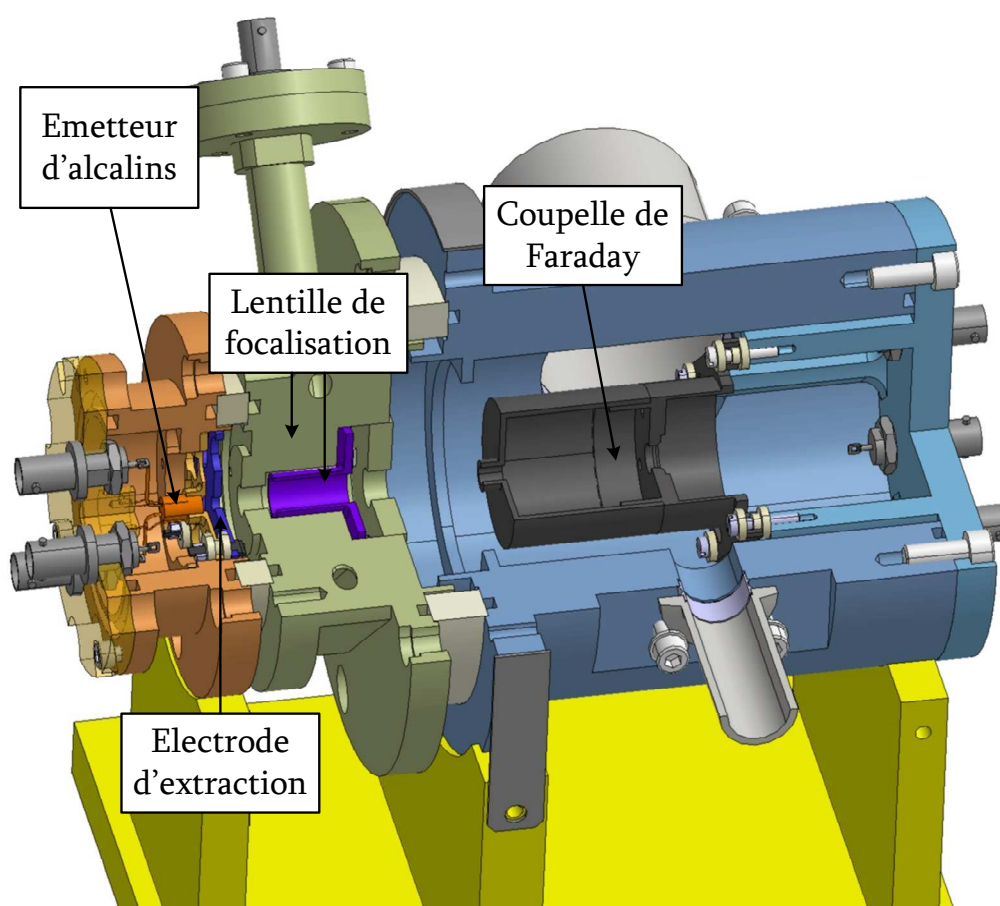


Fig. 49 _ Vue en coupe du dispositif destiné au test du canon à ions, montrant les différentes parties décrites dans le paragraphe ci-dessous.

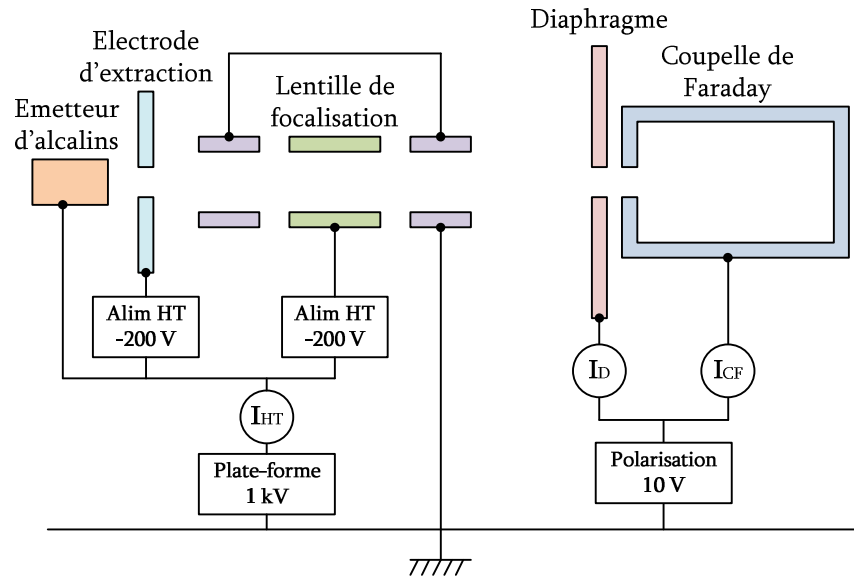


Fig. 50 _ Schéma électrique simplifié du canon à ions, les lectures de courant sont symbolisées par des cercles.

Le schéma de principe du montage électrique réalisé est présenté ci-dessus (Fig. 50). L'émetteur d'ions alcalins est polarisé à 1 kV, potentiel de la plate-forme. Les potentiels de l'électrode d'extraction et de la lentille de focalisation sont fixés par deux alimentations HT négatives référencées par rapport au potentiel de cette plate-forme. Des lectures de courants ont été ajoutées afin de mesurer l'intensité débitée par l'émetteur I_{HT} , celle récoltée par le diaphragme I_D et par la coupelle de Faraday I_{CF} . Le diaphragme et la coupelle de Faraday ont été polarisés afin de limiter la remontée d'électrons induite par le faisceau d'ions depuis ces parties vers les électrodes polarisées à la haute tension. La pulsation du faisceau est obtenue en abaissant brusquement la polarisation de l'électrode d'extraction.

La caractérisation du canon à ions, les spécifications techniques des émetteurs d'ions, le schéma électrique détaillé du canon à ions et du boîtier qui commande le potentiel de l'électrode d'extraction figurent dans l'annexe 2.4.

3.2.2. Description du canon à ion couplé à SISTHE.

3.2.2.1. Description de l'environnement et du système d'acquisition.

Le dispositif « SISTHE + canon à ion » a été mis en place sur le banc de test des ECS de SPIRAL 1 (Fig. 51). Ce banc de test est initialement conçu pour tester les performances des ECS (cible SPIRAL I et NanoGan 3) avant introduction dans la casemate de production. Nous décrirons brièvement les caractéristiques des équipements du banc qui seront utilisés lors de nos tests.

L'extraction du faisceau d'ions en sortie de source est assurée par une électrode reliée à la masse et sa focalisation par une lentille électrostatique. Le faisceau d'intérêt est sélectionné à l'aide d'un dipôle de rigidité magnétique 0,153 T.m. En sortie du dipôle, un système de fentes verticales permet de contrôler la largeur du faisceau. Les fentes ont été ajustées de manière à laisser passer sans pertes le faisceau de masse sélectionnée tout en coupant les masses adjacentes. La mesure du courant est effectuée par collection des ions dans une coupelle de Faraday. C'est une coupelle en cuivre de diamètre intérieur 40 mm, munie d'un anneau de garde polarisé afin de confiner les électrons émis.

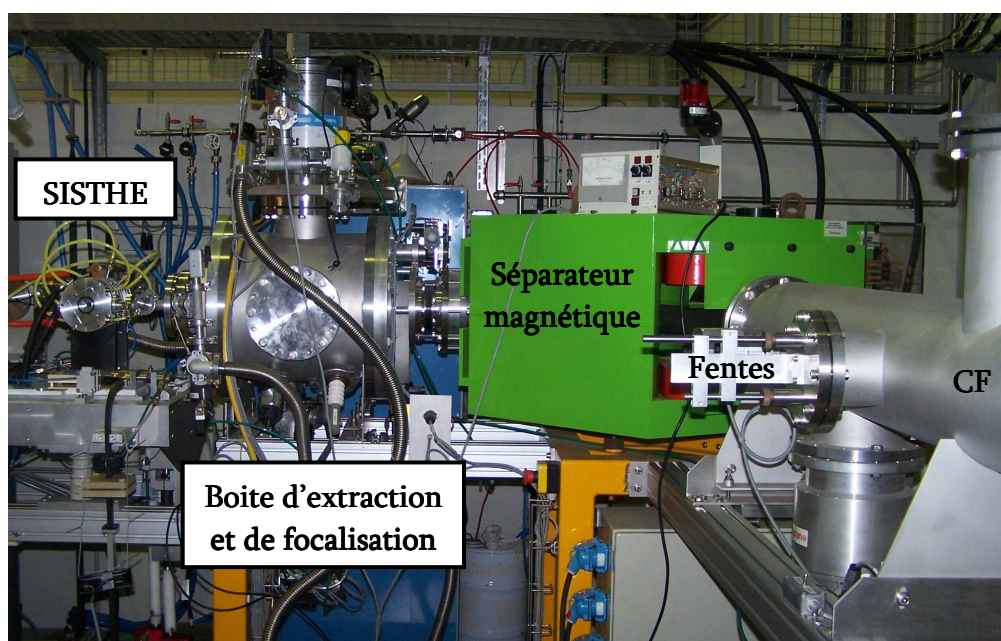


Fig. 51 _ Photo du banc de test des ECS de SPIRAL I. On y retrouve les différents composants du dispositif expérimental : SISTHE, le système d'extraction-focalisation, le dipôle, les fentes et la coupelle de Faraday.

Le canon à ions (Fig. 53) délivre son faisceau dans la cavité (Fig. 54). Le faisceau est stoppé sur une feuille de Papyex [188] (feuille flexible de fibres de graphite) (Fig. 55) placée dans la cavité. La cavité est elle même connectée au tube ioniseur. L'énergie des ions étant faible, (environ 1 keV), ils sont implantés sur une très faible épaisseur (3,4 nm pour le sodium). Les simulations effectuées avec le code RIBO (voir annexe 2.3 pour plus de détails) démontrent que la position ainsi que l'inclinaison de la feuille dans la cavité n'influencent pas la proportion des ions qui sortent vers le tube ioniseur (33%). Lors du montage du dispositif, le positionnement de la feuille de Papyex dans la cavité influencera donc peu cette valeur.

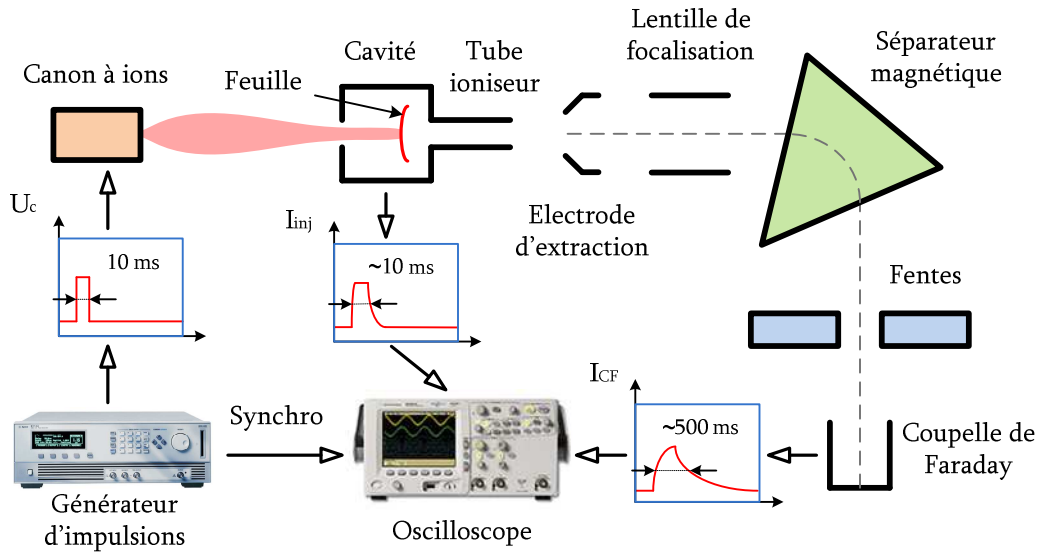


Fig. 52 _ Schéma de principe du système d'acquisition des mesures de temps de réponse et d'efficacité.

En sortie du tube ioniseur, l'énergie des ions dans la ligne après l'électrode d'extraction peut atteindre 20 keV. Elle est fixée par la tension de la plate-forme de l'ensemble de production. Une seconde plateforme, référencée par rapport à la première, fixe l'énergie des ions injectés dans la cavité à 1 keV. Des lectures de courant sont placées sur tous les éléments d'optique du canon à ions (voir le schéma électrique Fig. 60). Elles permettent de connaître le courant récolté sur chacun de ces éléments. Leur bilan permet de déduire précisément le courant d'ions injecté dans la cavité. Les lectures de courants sont effectuées à la haute tension. Leur acquisition est réalisée sur un oscilloscope référencé à la masse 0 V à l'aide de convertisseurs électrique-optique-électrique (EOE). L'injection d'impulsions d'ions par le canon déclenche simultanément l'acquisition sur l'oscilloscope. Le schéma de principe (Fig. 52) présente le système d'acquisition des mesures de temps de réponse et d'efficacité. L'allure de plusieurs signaux est présentée : U_c l'impulsion de commande envoyée au canon à ions, I_{inj} le courant injecté dans la cavité et enfin I_{CF} le courant mesuré sur la coupelle de Faraday.



Fig. 53 _ Photo de la partie interchangeable du canon à ions. Elle est constituée de l'émetteur d'ions alcalins et d'une électrode d'extraction.

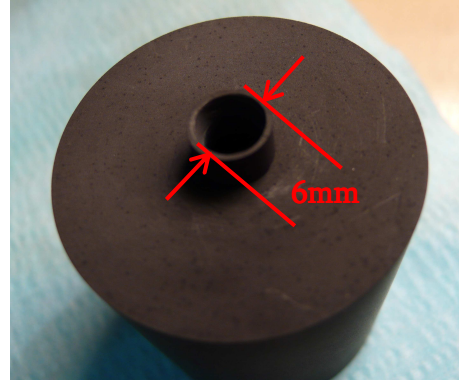


Fig. 54 _ Photo du couvercle de la cavité, comprenant l'orifice d'injection des ions.

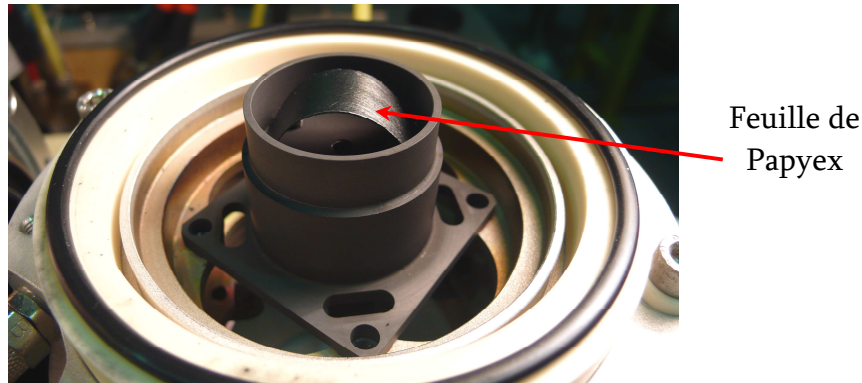


Fig. 55 _ Photo de la base de la cavité dans laquelle est insérée la feuille d'arrêt des alcalins.

3.2.2.2. Description de la mécanique.

La chambre à vide du dispositif expérimental SISTHE est composée de cinq brides isolées électriquement entre-elles par des bagues en alumines, dans le but de pouvoir les polariser indépendamment. Ces brides sont refroidies par un circuit d'eau. A l'intérieur de la chambre à vide les pièces en carbone forment deux circuits électriques. Le premier (en bleu et violet sur la Fig. 56) permet de faire circuler un courant (≈ 100 A) dans le tube ioniseur (Fig. 57) qui est alors chauffé par effet Joule. Une différence de potentiel se crée entre les deux extrémités du tube ce qui permet de guider les ions vers la sortie du tube. Le second circuit (en rouge et violet sur la Fig. 56) alimente le four en carbone (Fig. 59). Il est chauffé, lui aussi, par effet Joule ce qui fait varier la température de la cavité. Le système est conçu pour pouvoir changer facilement de tube ioniseur et ainsi de tester différents matériaux. Le carbone (Fig. 57) et le rhénium (Fig. 58) ont été testés. La longueur du tube est de 30 mm avec un diamètre intérieur de 4 mm. Le tube en rhénium est réalisé à partir d'une feuille d'épaisseur 125 μm , roulée puis soudée. Le tube ainsi obtenu est inséré à ses extrémités dans les orifices de pièces en

carbone dont les diamètres sont ajustés afin d'assurer un contact électrique. Le montage des tubes rhénium et carbone est quelque peu différent. Dans le cas du tube en rhénium, le point de contact électrique est défini à ± 2 mm près. Il est donc possible que le champ électrique ait été appliqué dès l'entrée du tube, ou à 4 mm de l'entrée. Dans le cas du tube en carbone, par construction les premiers 4 mm du tube sont quasiment exempts de champ électrique. La géométrie du tube est proche de celle des tubes ioniseurs des SIS couramment utilisées (voir la partie 2.2).

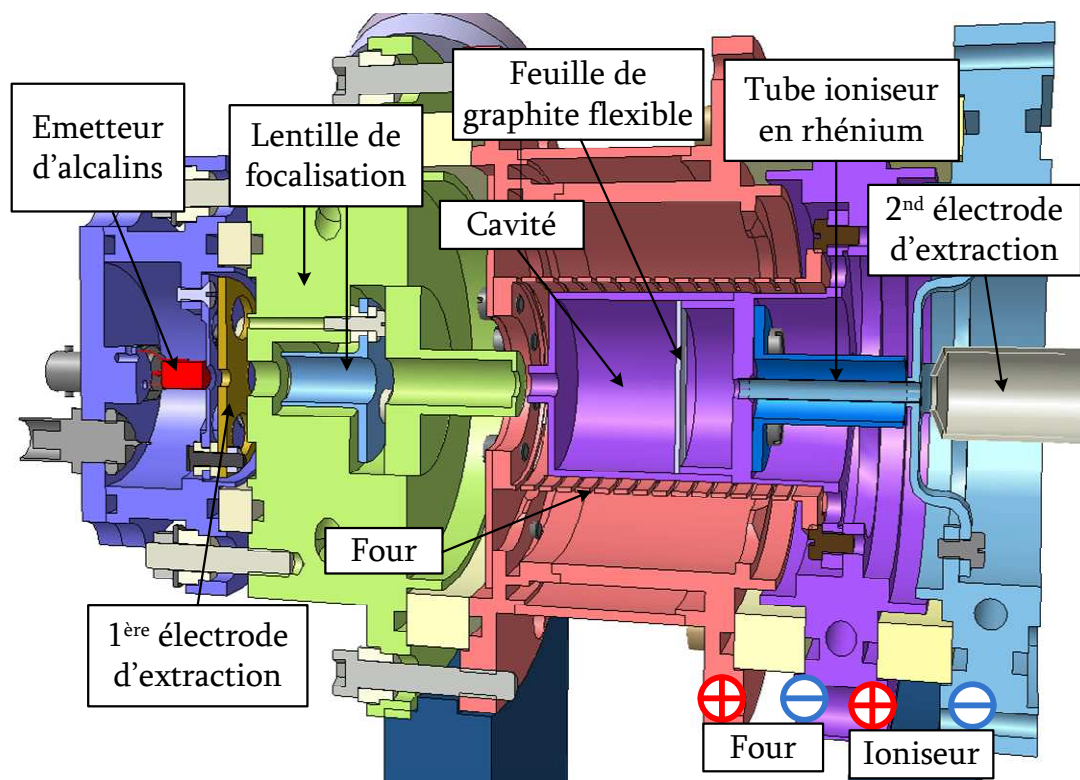


Fig. 56 _ Vue en coupe de la source SISTHE couplée au canon à ions pour les mesures d'efficacité et de temps de réponse. Le raccordement des bornes positives et négatives des alimentations de courant du four et du tube ioniseur est représenté.



Fig. 57 _ Photo du tube ioniseur en carbone. Diam. int. 4 mm. Diam. ext. 6 mm.



Fig. 59 _ Photo du four en carbone.



Fig. 58 _ Photo du tube ioniseur en rhénium. Diam. Int. 4 mm. Ep. Feuille 125 μm .

3.2.2.3. Description de la connexion électrique.

Le schéma électrique (Fig. 60) est simplifié. Les cercles représentent les lectures de courant qui permettent de mesurer l'intensité qui s'écoule au travers de l'électrode d'extraction I_{EXT} , de la lentille de focalisation I_L , du diaphragme I_D et de la plate-forme HT I_{HT} . Le schéma électrique détaillé ainsi que les spécifications techniques des appareils utilisés sont présentés en annexe 2.5.

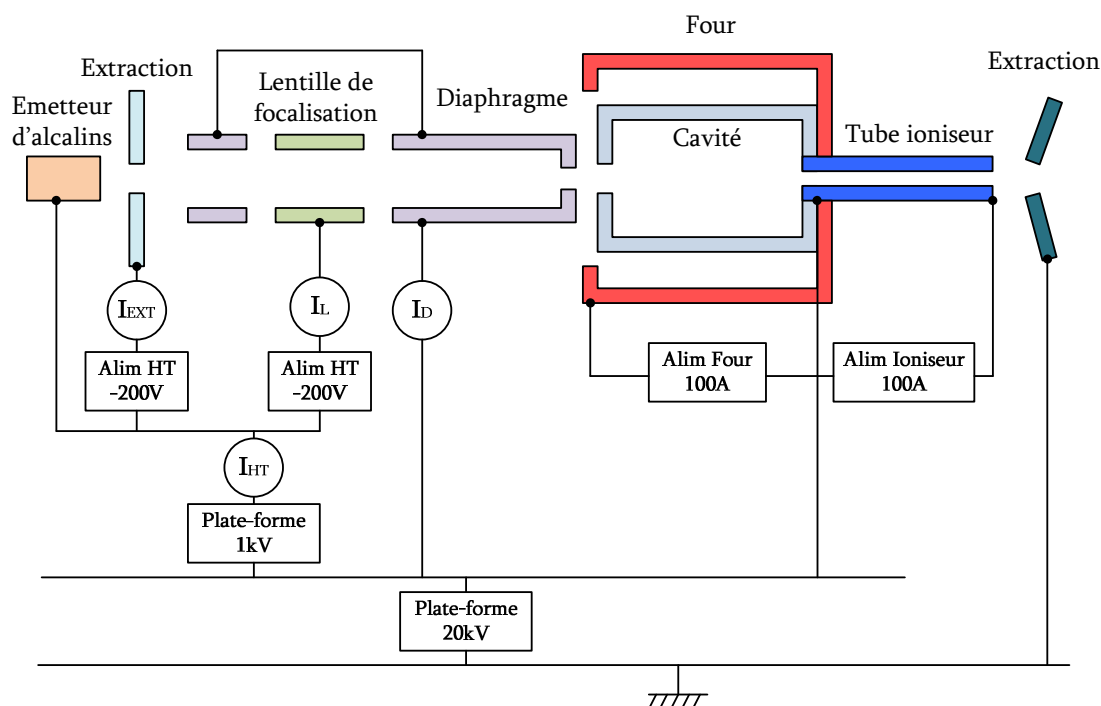


Fig. 60 _ Schéma électrique simplifié de l'ensemble canon à ions associé à SISTHE.

3.2.3. Modes de fonctionnement.

L'ensemble « canon à ions + SISTHE » peut être mis en place selon deux configurations sur le banc de test. La première permet d'effectuer la calibration thermique du four et du tube ioniseur en plaçant leur axe à 90° par rapport à l'axe de la ligne de faisceau. Un hublot placé sur la bride de sortie de la chambre, face au tube ioniseur permet de viser les différentes parties chaudes avec un pyromètre optique [189].

Dans la seconde configuration, l'axe de SISTHE et l'axe de la ligne de faisceau coïncident. Cette configuration permet d'envoyer les éléments ionisés dans la ligne d'analyse. Trois types de mesures sont alors effectués :

- Des mesures de temps de réponse du tube ioniseur. Ces mesures sont effectuées en retirant la cavité et la feuille de Papyex. Les impulsions d'alcalins sont directement injectées dans le tube ioniseur. L'évolution du courant mesuré sur la coupelle de Faraday donne le temps de réponse du tube ioniseur. La température du tube ioniseur sera modifiée au cours de ces mesures.
- Des mesures de temps de résidence des alcalins. Des impulsions d'alcalins sont injectées sur la feuille de Papyex dans la cavité. Les éléments alcalins vont effectuer un nombre important de collisions dans cette cavité avant d'être extraits. Le temps de réponse ainsi mesuré dépend du temps de résidence des alcalins sur la paroi de la cavité en carbone et du nombre de

contacts. L'évolution du temps de résidence en fonction de la température sera observée en faisant varier la température de la cavité.

- Des mesures d'efficacité d'ionisation. La même procédure que pour la mesure de temps de résidence est utilisée. La comparaison de l'intégrale du courant collecté sur la coupelle de Faraday et de l'intégrale du courant injecté permet de déterminer l'efficacité. Au cours des mesures, l'évolution de l'efficacité en fonction de la température du tube ioniseur sera observée.

3.2.4. Caractérisation de SISTHE.

3.2.4.1. Mesures de températures.

Au préalable des différentes mesures d'efficacité ou de temps de réponse, une mesure de température a été faite. Ces calibrations permettent de déterminer la température de manière précise, pour chacune des mesures effectuées, sans avoir à effectuer d'extrapolation. De plus, cela a permis de réaliser un abaque donnant la température de la cavité ou du tube ioniseur en fonction de la puissance imposée au tube ioniseur et au four. Les coefficients d'émissivité utilisés au cours des mesures sont présentés en annexe 2.6. L'erreur sur la détermination de la température est de ± 10 K.

Les températures maximales et minimales pour chacun des tubes ioniseurs sont indiquées sur l'abaque du haut (Fig. 61). Le tube en carbone présente un gradient de température plus important que le tube en rhénium car il présente un meilleur contact avec les amenées de courant qui constituent un pont thermique vers les zones refroidies. Son chauffage nécessite donc plus de puissance que celui du tube en rhénium. Il apparaît que la température de la cavité varie assez peu avec la température du tube ioniseur (respectivement 150°C pour 400°C).

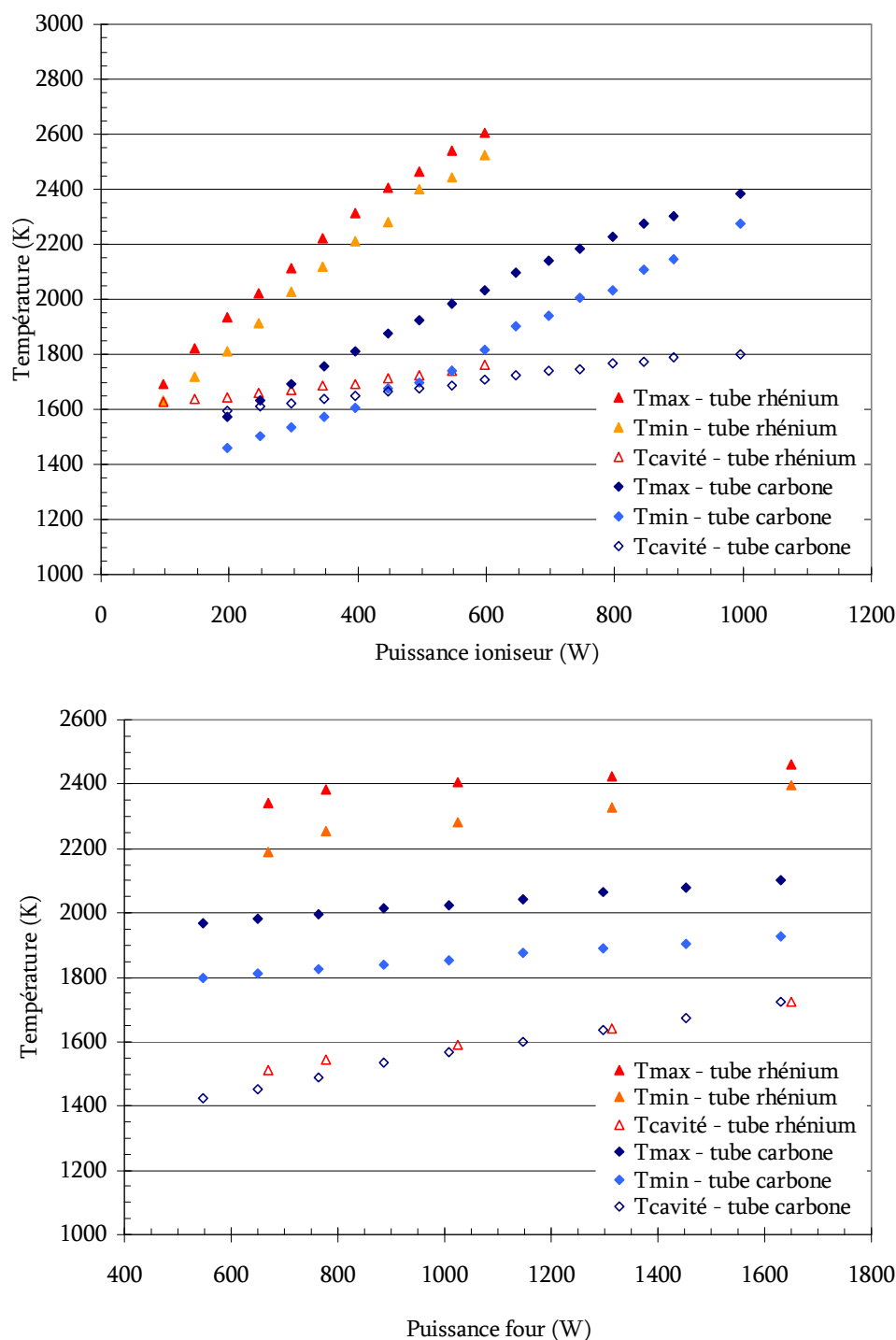


Fig. 61 _ Abaques présentant l'évolution de la température du tube ioniseur en carbone (losanges pleins) et en rhénium (triangles pleins) et de la cavité en carbone (triangles vides avec le tube rhénium et losanges vides avec le tube carbone).

Sur l'abaque du haut, la puissance du four est fixée à 1600 W et l'on varie la puissance du tube ioniseur. Sur l'abaque du bas, la puissance du ioniseur est fixée (650 W sur le tube en carbone et 500 W sur le tube en rhénium) et l'on varie la puissance du four.

L'abaque du bas (Fig. 61) présente l'évolution de la température du tube ioniseur et de la cavité en fonction de la puissance appliquée au four. Quel que soit le type de tube utilisé, les températures de la cavité obtenues pour une même puissance sont très proches. Une variation de la température de la cavité de 300 K engendre une variation de 130 K sur le tube ioniseur : le couplage thermique entre la cavité et le tube est important. Le four chauffe une zone plus vaste, il est logique que son influence soit plus conséquente sur le tube ioniseur que l'inverse.

3.2.4.2. Estimation du champ électrique.

Un des paramètres fondamentaux pour le fonctionnement optimum d'une source à ionisation de surface est le champ électrique qui règne dans le tube ioniseur. En effet, il permet de favoriser l'extraction des ions produits dans le tube. Les calibrations donnent ce champ électrique en fonction de la température du tube. Il correspond au rapport entre la différence de potentiel appliquée aux bornes du tube et sa longueur. La différence de potentiel aux bornes du tube est calculée à partir de celle mesurée aux bornes de l'alimentation. Cette valeur est corrigée des pertes dans les câbles et dans les pattes en carbone qui alimentent le tube ioniseur. Les pertes dans les câbles ont été mesurées au cours de l'expérience. Les pertes dans les pattes en carbone ne peuvent être qu'estimées.

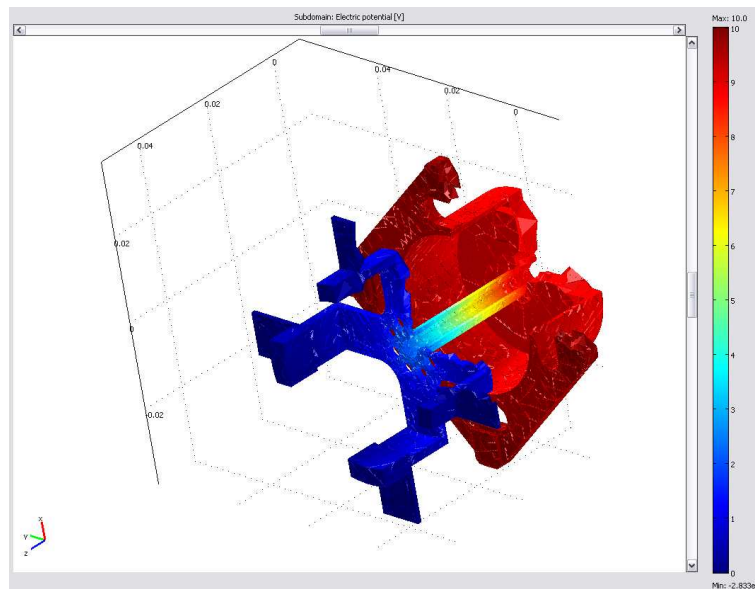


Fig. 62 _ Exemple de résultat obtenu à l'aide du code COMSOL Multiphysics qui donne l'évolution du potentiel électrique le long du circuit du tube ioniseur en échelle relative. Il apparaît que c'est dans le tube ioniseur que le gradient de potentiel est le plus important.

Pour ceci, un modèle 3D de l'ensemble des pièces du circuit électrique du tube ioniseur pouvant engendrer des pertes est réalisé avec le logiciel COMSOL

Multiphysics [141]. L'approximation suivante est effectuée : la résistivité électrique de toutes les pièces en carbone du circuit d'alimentation est fixée à 5 m Ω .cm. Celle du tube ioniseur est fixée à une valeur allant de 4 m Ω .cm à 3 m Ω .cm, selon sa température. Ces valeurs sont données par Powell et al [190] et correspondent respectivement à la résistivité électrique du carbone à 800 K et pour des températures allant de 1600 K à 2300 K. Le code permet alors de calculer la résistance électrique de chacune des parties du circuit du tube ioniseur, et plus particulièrement celle des pattes en carbone. La résistance des pattes en carbone est considérée comme identique pour les deux versions (tube en carbone ou rhénium), étant donné la géométrie similaire des pièces. Un exemple de résultat obtenu à l'aide du code est présenté sur la figure ci-dessus (Fig. 62). Cette démarche permet de déterminer le champ électrique à l'intérieur du tube ioniseur, en fonction de la puissance appliquée et donc de la température. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure (Fig. 63).

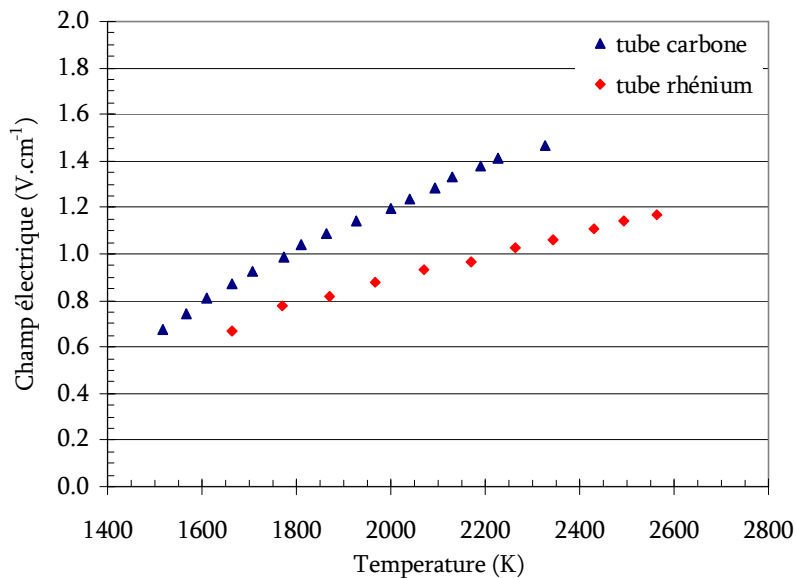


Fig. 63 _ Graphique présentant l'évolution du champ électrique dans le tube ioniseur en carbone (triangles) et en rhénium (losange) en fonction de la température du tube. Ces résultats sont déduits du calcul de résistance et de mesures effectuées pour une puissance de 1600 W sur le four.

En fonction de la puissance déposée sur le tube ioniseur, le champ électrique varie entre 0,65 et 1,5 V.cm⁻¹ pour le tube en carbone, et 0,65 et 1,2 V.cm⁻¹ pour le tube en rhénium. A température équivalente, le champ électrique dans le tube en carbone est plus élevé que dans le tube en rhénium. De plus, il augmente plus rapidement avec la température dans le tube en carbone.

3.3. Modèle analytique.

Afin de pouvoir rendre compte de l'allure des courbes de réponse en temps de l'ensemble « cavité + tube ioniseur », un modèle analytique a été développé.

3.3.1. Présentation du modèle.

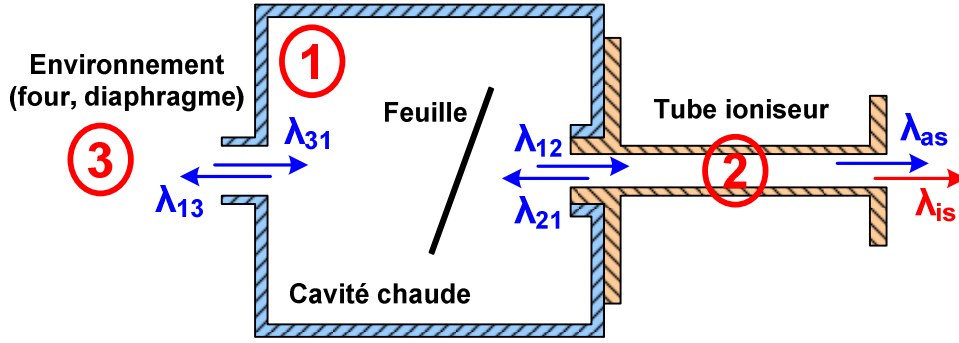


Fig. 64 _ Schéma de principe du dispositif pris pour le modèle. On y distingue les trois zones principales qui seront utilisées dans la description analytique : 1-cavité, 2-tube ioniseur et 3-l'environnement rencontré en cas de sortie des atomes vers le canon à ions.

La variation instantanée du nombre n de particules dans chaque zone est gouvernée par un système de 4 équations différentielles couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_3(t)}{dt} = \lambda_{13} \cdot n_1(t) - (\lambda_{31} + \lambda_p) \cdot n_3(t) \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = \lambda_{31} \cdot n_3(t) + \lambda_{21} \cdot n_2(t) + \tau_0(t) - (\lambda_{13} + \lambda_{12}) \cdot n_1(t) \\ \frac{dn_a(t)}{dt} = \lambda_{12} \cdot n_1(t) + \lambda_0 \cdot n_i(t) - (\lambda_{as} + \lambda_i + \lambda_{21}) \cdot n_a(t) \\ \frac{dn_i(t)}{dt} = \lambda_i \cdot n_a(t) - (\lambda_0 + \lambda_{is}) \cdot n_i(t) \end{array} \right. \quad (33)$$

Les numéros en indice correspondent aux zones mentionnées sur la Fig. 64. Les indices i et a correspondent respectivement aux ions et aux atomes se trouvant dans le tube ioniseur. Les termes du type λ_{ij} sont représentatifs du passage des atomes de la zone i vers la zone j , ils correspondent au rapport entre un flux de particules et un nombre de particules. Dans la suite, les λ_{ij} seront abusivement appelés « vitesses ». λ_p correspond à un terme de perte dans la zone 3 qui permet de rendre compte des atomes se collant dans une zone suffisamment froide de l'environnement pour y rester prisonnier. λ_i et λ_0 représentent respectivement les vitesses d'ionisation et de neutralisation. λ_{as} et λ_{is} symbolisent la vitesse de sortie atomique et ionique du tube ioniseur. Le terme τ_0 constitue le terme source de la cavité. Ce flux provient du relâchement des atomes implantés sur la feuille et peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\tau_0(t) = \lambda_{rel} \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda_{rel} \cdot t} \quad (34)$$

N_0 représente le nombre d'atomes implantés sur la feuille et λ_{rel} la vitesse de relâchement des atomes par cette feuille. Compte tenu de la faible profondeur d'implantation des ions dans la feuille leur relâchement est décrit par une seule exponentielle.

Le but est de déterminer $\lambda_{is} \cdot n_i(t)$, terme symbolisant la quantité d'ions sortant du ioniseur. Un tel système d'équation conduit à des solutions complexes qui ne permettent pas d'effectuer un ajustement des données récoltées sur une fonction simple (plusieurs jeux de paramètres possibles). Afin d'obtenir une solution plus simple, certaines hypothèses simplificatrices ont été adoptées. La démarche suivie, les hypothèses adoptées ainsi que la définition des constantes α , β , p_+ et p_- sont exposées dans l'annexe 2.7. L'expression du courant d'ions relâchés obtenue est la suivante :

$$n_i^{sortiesource}(t) = N_0 \cdot \lambda_i \cdot \lambda_{is} \cdot \left\{ \begin{aligned} & \frac{\lambda_{rel} \cdot (\alpha \cdot \lambda_{12} + \beta \cdot \lambda_{32})}{p_+ \cdot (p_+ - p_-) \cdot (p_+ + \lambda_{rel})} \cdot e^{p_+ \cdot t} - \frac{\lambda_{rel} \cdot (\alpha \cdot \lambda_{12} + \beta \cdot \lambda_{32})}{p_- \cdot (p_+ - p_-) \cdot (p_- + \lambda_{rel})} \cdot e^{p_- \cdot t} \\ & + \frac{\alpha \cdot \lambda_{12}}{p_+ \cdot p_-} \cdot e^{-(\lambda_{12} + \lambda_{13})t} + \frac{\beta \cdot \lambda_{32}}{p_+ \cdot p_-} \cdot e^{-\lambda_{32} \cdot t} - \frac{\alpha \cdot \lambda_{12} + \beta \cdot \lambda_{32}}{(p_+ + \lambda_{rel}) \cdot (p_- + \lambda_{rel})} \cdot e^{-\lambda_{rel} \cdot t} \end{aligned} \right\} \quad (35)$$

Les deux exponentielles fonctions de p_+ et p_- représentent respectivement une fonction croissante et une fonction décroissante liées à la réponse du tube ioniseur. L'exponentielle fonction de λ_{rel} correspond à une phase de montée due au relâchement des atomes de la feuille. Les deux dernières exponentielles fonctions de $\lambda_{12} + \lambda_{13}$ et λ_{32} se rapportent à deux termes de descente. La première est liée à l'effusion la plus rapide, celle des atomes qui sortent de la cavité. λ_{32} correspond aux phénomènes qui peuvent donner lieu à la présence d'atomes ou d'ions alcalins à des temps plus importants que les temps caractéristiques de la cavité et du tube ioniseur : la diffusion des atomes dans l'épaisseur de la paroi de la cavité par exemple. L'amplitude du courant d'ions relâché est croissante avec le taux d'ionisation λ_i .

3.3.2. Passage aux grandeurs physiques.

Une fois cette expression analytique établie, il est important de relier les grandeurs statistiques de cette expression à des grandeurs physiques.

- $\lambda_{12} + \lambda_{13}$ taux de sortie de la cavité

Ce terme qui mesure la vitesse avec laquelle les atomes effusent en dehors de la cavité dépend des moyennes du temps $\langle t_V \rangle$ de vol total des atomes, du temps

$\langle \tau_r \rangle$ de résidence des atomes sur les parois de la cavité et enfin du nombre $\langle \chi_{cavité} \rangle$ de collisions ayant eu lieu sur les parois avant la sortie de la cavité.

$$\lambda_{12} + \lambda_{13} = \frac{1}{\langle t_v \rangle + \langle \chi_{cavité} \rangle \cdot \langle \tau_r \rangle} \quad (36)$$

Le nombre moyen de collisions dans la cavité $\langle \chi_{cavité} \rangle$ peut être estimé par le rapport entre la surface intérieure de la cavité et celle des orifices de sortie. La géométrie de la cavité conduit à un nombre de 190 collisions. Une approche plus précise mettant en œuvre des simulations Monte Carlo (code RIBO) donne un nombre de collisions moyen de 270. Ce dernier chiffre est plus élevé car les collisions sur la feuille placée au centre de la cavité sont prises en compte dans cette simulation.

La moyenne du temps $\langle t_v \rangle$ de vol total avant la sortie de la cavité est donnée par la simulation RIBO. La simulation est effectuée pour le sodium et une température de la cavité de 300 K. Il est considéré que la distribution de vitesse des atomes dans la cavité est régie par l'équation de Maxwell-Boltzmann. Dans ce cas, il est possible de calculer $\langle t_v \rangle$ pour d'autres masses m d'alcalins et d'autres températures T .

$$t_v \propto \sqrt{\frac{m}{T}} \quad (37)$$

Le temps de résidence sur la paroi qui est déduit de cette démarche, pourra être comparé au temps de collage sur une paroi. Le temps de collage moyen, τ_c , dépend de l'enthalpie de désorption E_D du couple atome/surface et de τ_0 , une constante de l'ordre de 10^{-13} s dépendant de la surface du matériau. Cette dépendance est exprimée par l'équation de Frenkel [191] rappelée ci-dessous (38) :

$$\tau_c = \tau_0 \cdot e^{\frac{E_D}{k_B T}} \quad (38)$$

3.4. Résultats.

Il est rappelé que le but initial de l'expérience était de déterminer l'efficacité et le temps de transformation des atomes en ions de la source. Comme cela est expliqué plus tard, ce dispositif aura aussi permis d'estimer le temps de résidence des alcalins sur les parois de la cavité. Pour répondre à ces attentes, différentes séries de mesures ont été réalisées.

3.4.1. Mesure du temps de réponse du tube ioniseur.

3.4.1.1. Principe de la mesure.

Une première série de tests consiste à mesurer le temps de réponse du tube ioniseur seul en fonction de la puissance qui lui est imposée. Le tube ioniseur est en carbone. La variation de la puissance déposée sur le tube ioniseur fait varier trois paramètres pouvant influencer son temps de réponse :

- Le champ électrique E : Une augmentation de la puissance du tube ioniseur entraîne l'augmentation du champ électrique, ce qui réduit le nombre de collisions dans le tube ioniseur. Les ions sont plus facilement extraits et le temps de réponse en sera réduit. Il est à noter que pour une même valeur de champ électrique et une même probabilité d'ionisation par contact, le nombre de collisions dans le tube ne dépend que du rapport entre énergie thermique et énergie cinétique communiquée par le champ électrique, ce qui rend ce nombre de collisions indépendant de la masse de l'élément.
- Le temps de collage : L'augmentation de la puissance du tube ioniseur entraîne simultanément l'élévation de la température du tube. Le temps de collage individuel des alcalins sur la paroi du tube est alors réduit. Ce temps dépend de l'alcalin étudié.
- La probabilité d'ionisation par contact : La température du tube ioniseur modifie aussi la probabilité d'ionisation par contact. Si la probabilité d'ionisation par contact augmente, les alcalins seront plus souvent entraînés vers la sortie par le champ électrique et le temps de réponse sera plus court.

Pour cette série de mesures, la cavité et la feuille d'arrêt du faisceau ont été retirées. De cette manière, le faisceau peut être envoyé directement dans le tube ioniseur.

- La partie des ions la moins bien focalisée est implantée sur le fond de la cavité, près de l'orifice d'entrée du tube ioniseur. La taille de cet orifice étant réduite ($\varnothing = 4$ mm), les ions implantés sur le fond de la cavité auront une probabilité négligeable de pénétrer dans le tube ioniseur (rappelons que la cavité a été retirée, ces ions ont donc une probabilité importante d'être perdus).

- Une partie des ions traverse le tube ioniseur sans effectuer de contact. Ce faisceau « direct » parvient sur la coupelle de Faraday avec une énergie de 21 keV.
- Enfin, une partie des ions est déposée le long du tube ioniseur. Ces ions sont stoppés, ré-ionisés, puis ré-accélérés à la tension de la plate-forme (20 kV). Ce faisceau « indirect » est donc facile à séparer du faisceau direct à l'aide du dipôle.

C'est la forme de la réponse du faisceau indirect qui permet de déterminer le temps de réponse du tube ioniseur. Pour cela, une série d'impulsions de 2 ms est envoyée avec une période d'environ 1 s sur le tube ioniseur et l'évolution en temps du faisceau indirect collecté par la coupelle de Faraday est mesurée. Le signal est moyenné sur plusieurs cycles, de manière à diminuer le bruit de fond provenant majoritairement des perturbations électromagnétiques générées par le 50 Hz du réseau électrique.

Les mesures ont été effectuées pour une puissance de 700 W sur le four, valeur arbitraire puisque c'est la puissance du tube ioniseur qui influence principalement la mesure du temps de réponse. La puissance imposée au tube ioniseur en carbone varie entre 300 W et 800 W. La mesure thermique, réalisée à l'aide d'un pyromètre optique, juste après les mesures de temps de réponse, permet de déterminer la température du tube ioniseur dans les mêmes conditions expérimentales.

La figure (Fig. 65) présente quelques unes des réponses obtenues avec l'émetteur de rubidium et pour différentes puissances imposées au tube ioniseur. La diminution du temps de réponse du tube ioniseur lorsque sa température augmente y apparaît clairement. Sur ce graphe est aussi représenté le faisceau direct. Il permet de connaître l'allure de l'impulsion qui est envoyée dans le tube ioniseur, puisque le retard engendré par le transport dans la ligne d'analyse à 20 kV est négligeable.

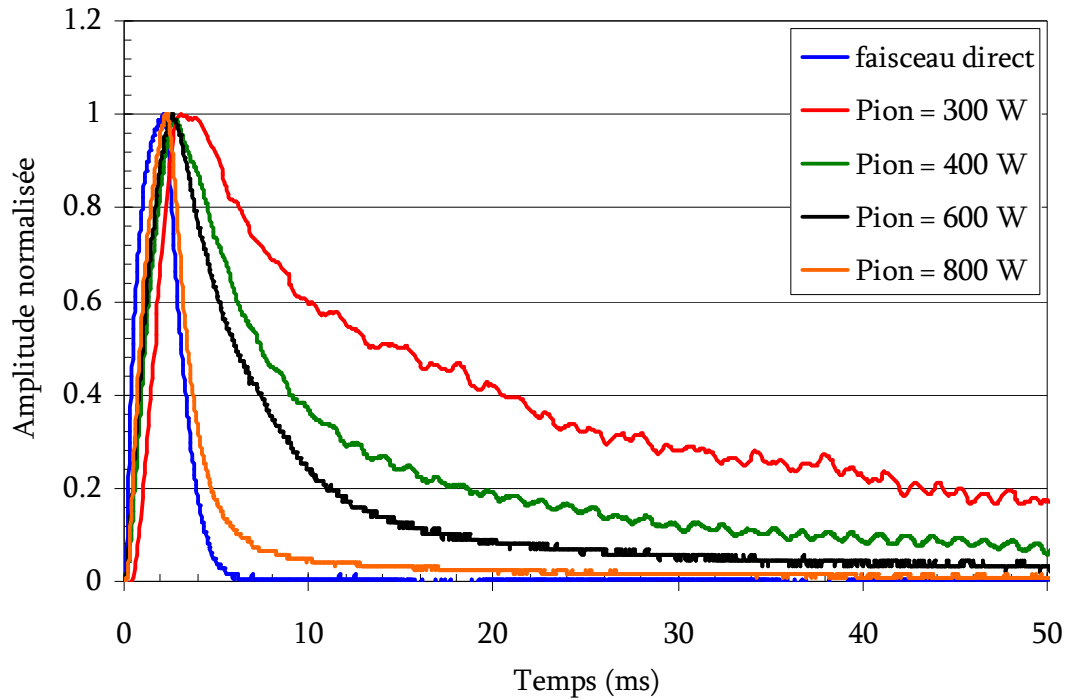


Fig. 65_ Exemples de réponses du tube ioniseur en carbone pour $P_{ioniseur}$ valant 300, 400, 600 et 800 W, réalisées avec l'émetteur de Rb. La forme de l'impulsion du faisceau direct est aussi présentée. L'amplitude des impulsions a été normalisée afin de mettre en évidence l'évolution du temps de réponse.

3.4.1.2. Résultats.

Afin de quantifier l'évolution du temps de réponse du tube ioniseur, le temps correspondant à 50% de la valeur de l'intégrale de l'impulsion de réponse est calculée. Au préalable le bruit de fond des réponses mesurées a été supprimé. Le graphique (Fig. 66) présente l'évolution du temps de réponse à 50% en fonction de la température et du champ électrique du tube ioniseur pour différents alcalins (Cs, Rb, K et Na). Le temps de réponse à 50% du faisceau direct est aussi représenté. Il est indépendant de la température du tube ioniseur mais aussi de l'élément étudié.

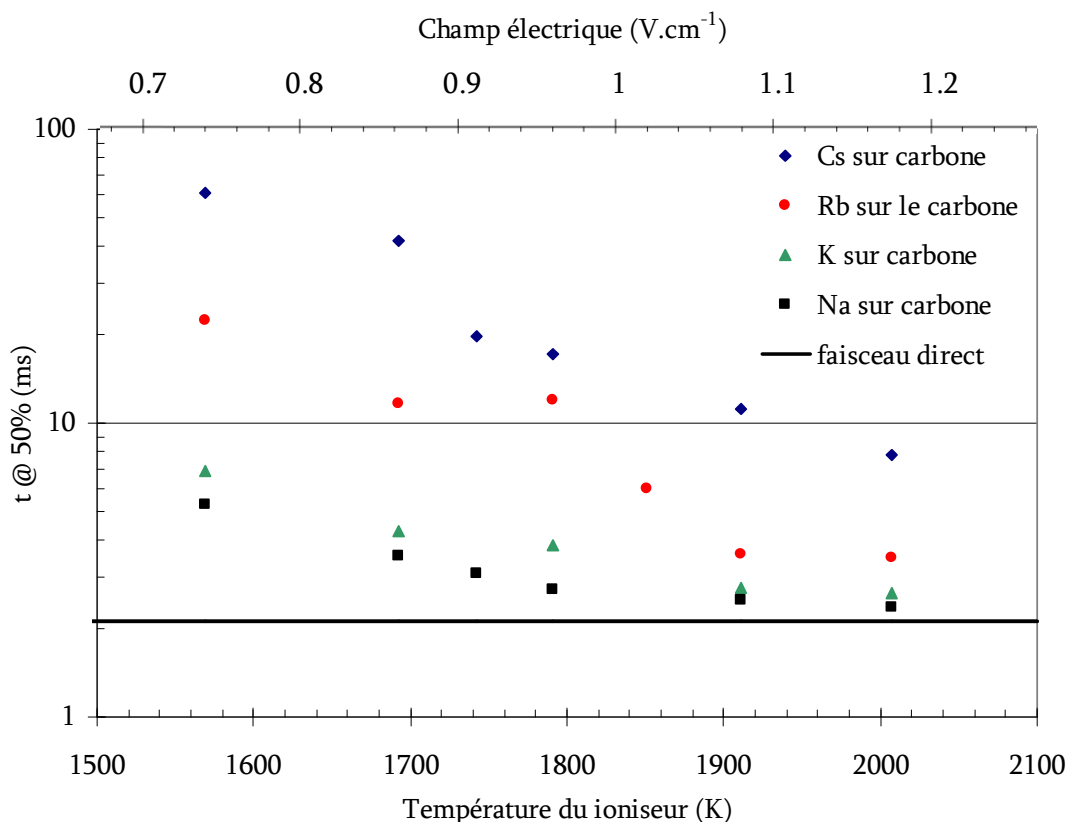


Fig. 66_ Graphique présentant l'évolution du temps de réponse à 50% du tube ioniseur en fonction de sa température. Il a été mesuré pour le césium (losange), le rubidium (cercle), le potassium (triangle) et le sodium (carré). La ligne placée à environ 2 ms représente le temps de réponse du faisceau direct, indépendant de l'alcalin ou de la température du tube ioniseur.

3.4.1.3. Discussion.

Le graphique précédent montre que les temps de réponse diminuent lorsque la température et le champ électrique augmentent pour tendre vers le temps de réponse du faisceau direct. Pour des températures supérieures à 1600 K, le temps de réponse à 50% du tube ioniseur est inférieur à 60 ms. Il apparaît que le temps de réponse augmente avec la masse de l'élément, mais pas selon la racine du rapport des masses.

Le temps d'effusion (avec un temps de collage nul) dans un tube présentant la même géométrie que le tube ioniseur (rayon = 2 mm, longueur = 3 cm) est estimé à 0,4 ms pour le césium à 1500 K. Pour des éléments plus légers, le temps d'effusion sans collage est inférieur à celui du césium. L'ionisation des éléments dans le tube ioniseur entraîne une diminution du temps d'écoulement dans le tube ioniseur par rapport au temps d'effusion sans collage. Par conséquent, quel que soit l'élément ou la valeur du champ électrique dans le tube, le temps de

sortie du tube ioniseur devrait être inférieur au temps d'effusion pure du césium (0,4 ms)

Les temps observés sont nettement supérieurs ; un autre effet que l'écoulement atomique et ionique intervient ici : le collage. Celui-ci serait plus important pour les alcalins les plus lourds. Cette hypothèse a été vérifiée au cours de la série de mesures suivantes.

Au cours de ces mesures, les ions sont implantés le long du tube ioniseur. Les temps de réponse mesurés seraient-ils fortement modifiés si les alcalins provenaient de l'entrée du tube ioniseur ? Les calculs effectués à l'aide du code Monte Carlo (annexe 2.1) apportent un élément de réponse. Les calculs réalisés avec les caractéristiques du tube ioniseur de SISTHE, mais avec deux conditions initiales différentes (C1 : injection des ions en entrée de tube ioniseur et C2 : injection des ions uniformément le long du tube), montrent que le nombre de collisions diffère peu. Par exemple, pour les calculs effectués avec un champ électrique de $0,7 \text{ V.cm}^{-1}$, le nombre de collisions passe de 33 à 23 entre C1 et C2. Ces valeurs sont extraites des tables 1 et 2 de l'annexe 2.1. Par conséquent, les temps mesurés sont représentatifs du temps de réponse du tube ioniseur.

3.4.2. Mesure du temps de résidence des alcalins sur le carbone.

3.4.2.1. Principe de la mesure.

Cette seconde série de mesures a pour but d'évaluer le temps de résidence par contact des alcalins sur le carbone en fonction de la température. Cette donnée est essentielle pour estimer la vitesse d'effusion des alcalins depuis la cible de production de SPIRAL 2 jusqu'à la source d'ionisation.

Pour cela, des impulsions d'ions alcalins sont envoyées sur la feuille placée à l'intérieur de la cavité. La puissance imposée au four est réglée entre 1600 W et 600 W. La puissance du tube ioniseur est constante : 650 W pour le tube en carbone et 400 W pour le tube en rhénium, ce qui assure dans tous les cas des temps de réponse du tube inférieurs à 10 ms. La température de la cavité est considérée uniforme car celle-ci est entièrement incluse dans le four assurant une zone de chauffage homogène. Les températures ainsi obtenues sont présentées sur la figure (Fig. 61). Le graphique (Fig. 67) présente quelques exemples de courbes de réponses du courant de Rb^+ mesurées en sortie du tube ioniseur.

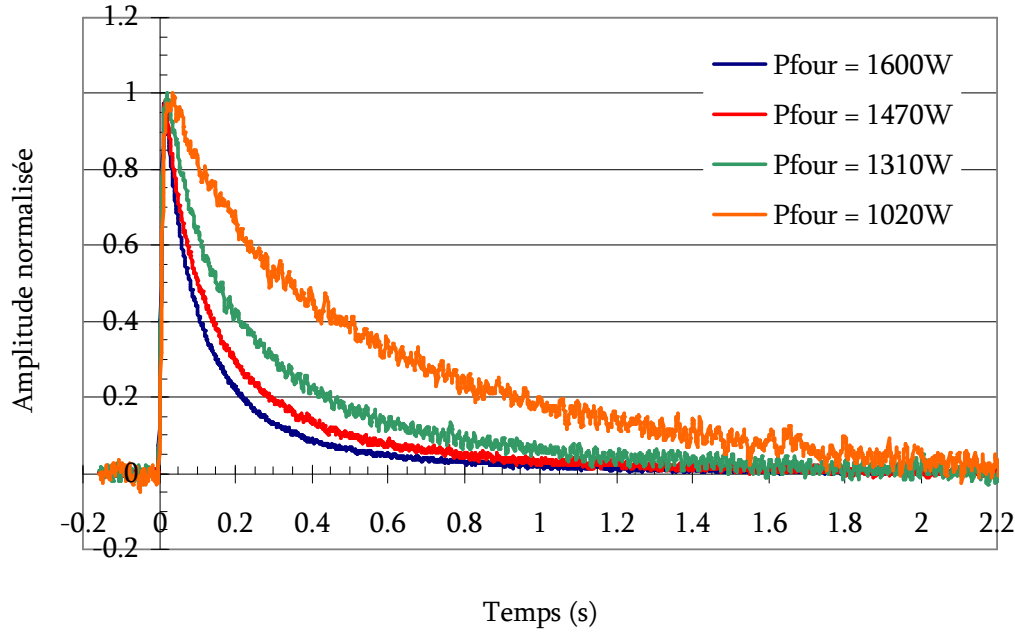


Fig. 67 _ Graphique présentant quelques courbes de réponses obtenues pour différentes puissances imposées au four. Ces mesures ont été réalisées pour le rubidium et le tube ioniseur en carbone à une puissance de 650 W. L'amplitude des impulsions a été normalisée afin de mieux observer l'évolution du temps de réponse.

L'allongement du temps de réponse de la cavité est notable lorsque la puissance imposée au four diminue. Les temps de réponses du tube ioniseur seul mesurés dans la partie précédente (<10 ms) sont négligeables devant les temps de réponse de l'ensemble « cavité + ioniseur » mesurés ici. La réponse de l'ensemble « cavité + ioniseur » est donc principalement gouvernée par la phase d'effusion hors de la cavité. L'expression (35) donne la réponse à une impulsion de notre système. Dans cette équation, si la composante de temps due au tube ioniseur est négligée, la phase de descente des réponses est gouvernée par deux exponentielles : la plus rapide représente le temps d'effusion des alcalins hors de la cavité ($\lambda_{12} + \lambda_{13}$), la plus lente représente le terme de recyclage (λ_{32}). La phase de descente des réponses mesurées est reproduite par la somme de deux exponentielles décroissantes, dont la plus rapide nous conduit au temps de sortie de la cavité. Ce temps est gouverné par le temps de vol, le temps de résidence des atomes suite à un contact sur la paroi, ainsi que par le nombre de contacts dans la cavité. Le temps de vol et le nombre de collisions sont des paramètres calculés. Le temps de résidence peut alors être déduit de la mesure de la vitesse de sortie des atomes de la cavité. La démarche est détaillée dans la partie 3.3. A partir de la

formule (36) qui relie le paramètre de l'ajustement au temps de résidence recherché, il est possible de calculer l'erreur commise sur ce terme.

$$\Delta < \tau_r >^2 = \Delta < \chi_{cavité} >^2 + \frac{\left(\frac{\delta(\lambda_{12} + \lambda_{13})}{(\lambda_{12} + \lambda_{13})^2} \right)^2 + \delta < T_v >^2}{\left(\frac{1}{\lambda_{12} + \lambda_{13}} + < T_v > \right)^2} \quad (39)$$

Avec

$\Delta < \tau_r >$: Erreur relative sur le temps résidence moyen des atomes sur les parois de la cavité.

$\Delta < \chi_{cavité} >$: Erreur relative sur le nombre de collisions moyen ayant eu lieu sur les parois avant la sortie de la cavité. Dans des conditions géométriques similaires à celle du dispositif, les écarts constatés sur les résultats des simulations RIBO (voir l'annexe 2.3) sont inférieurs à 7%.

$\delta(\lambda_{12} + \lambda_{13})$: Erreur absolue sur le paramètre d'ajustement de la fonction de relâchement. L'erreur sur ce terme dépend de chaque ajustement effectué sur la fonction de relâchement.

$\delta < T_v >$: Erreur relative sur la moyenne du temps de vol total des atomes. De la même manière que pour le nombre de collisions dans la cavité, l'erreur sur ce paramètre est déterminée à partir des écarts constatés sur les résultats des simulations RIBO.

L'erreur sur le temps de résidence a été calculée pour chacune des fonctions de relâchement. Elles sont toutes comprises entre 5 et 10%. Les barres d'erreurs n'ont pas été reportées sur les graphiques suivant pour une question de lisibilité.

3.4.2.2. Résultats.

Ce type de mesures a été effectué pour quatre alcalins : césium, rubidium, potassium et sodium. Les mesures ont été principalement réalisées avec le tube ioniseur en carbone, toutefois quelques points ont aussi été mesurés avec le tube ioniseur en rhénium. Une tentative de mesure a été faite avec le lithium mais étant donné la trop faible amplitude des réponses obtenues, il n'a pas été possible d'effectuer d'ajustement correct des réponses. Pendant les premières heures d'utilisation de l'émetteur de lithium, une importante quantité de polluants (sodium, potassium et rubidium) était débitée par celui-ci (voir en annexe 2.4). Des mesures ont donc été effectuées avec ces différents polluants. Elles présentent l'avantage d'avoir été effectuées dans des conditions de fonctionnement du dispositif SISTHE parfaitement identiques puisque le passage d'un alcalin à l'autre s'effectuait uniquement en modifiant le champ magnétique du séparateur.

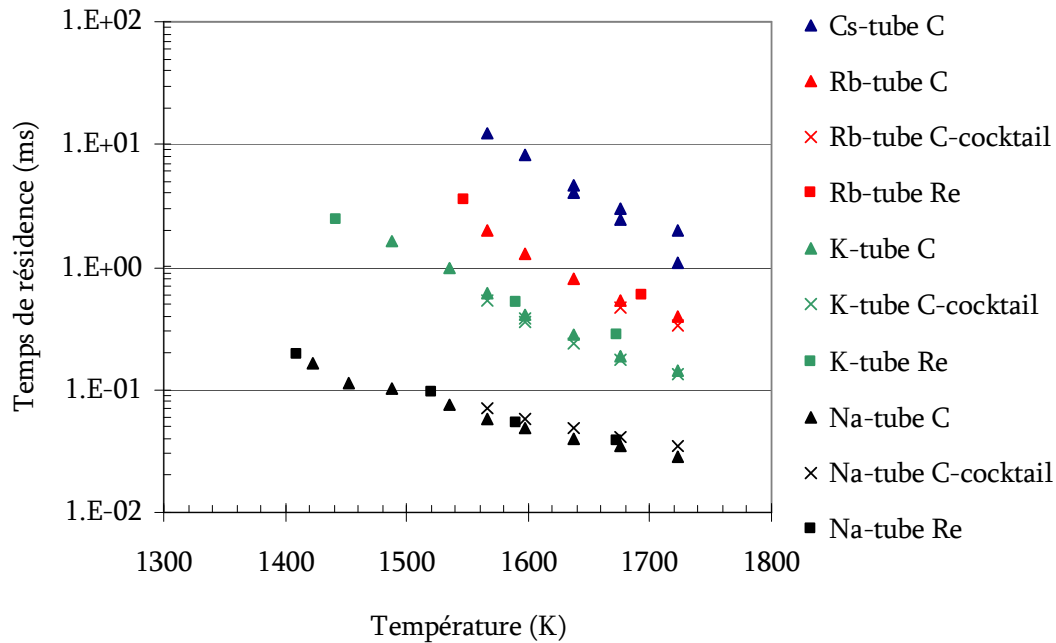


Fig. 68 _ Graphique représentant l'évolution du temps de résidence par contact sur une surface en graphite en fonction de sa température. Ces mesures ont été effectuées pour le césium (bleu), le rubidium (rouge), le potassium (vert) et le sodium (noir). Le tube ioniseur en carbone (triangle) et le tube en rhénium (carré) ont été utilisés. Des mesures ont été pratiquées à l'aide des polluants de l'émetteur de lithium (croix).

La figure (Fig. 68) présente l'ensemble des résultats. Le temps de résidence diminue avec l'augmentation de la température et avec la masse de l'alcalin. Dans la gamme de températures allant de 1400 K à 1700 K, tous les temps de résidence sont compris entre 30 μ s et 1,3 ms. Un moyen de contrôler la validité de ces résultats est de les comparer aux mesures de temps de réponse du tube ioniseur seul. A 1570 K, le temps de résidence mesuré du césium est de 11 ms. A cette température, le champ électrique dans le tube ioniseur en carbone est de 0,75 V.cm⁻¹ et la probabilité d'ionisation par contact du césium est proche de 100%. Dans ces conditions, le nombre de collisions dans le tube est estimé à 5,8. Cette estimation provient d'un calcul effectué avec le code Monte Carlo présenté en annexe 2.1. Cela conduit à un temps de réponse (en négligeant l'effusion) de 64 ms. Cette valeur est du même ordre de grandeur que le temps de réponse à 50% mesuré pour le tube à 1570 K : 61 ms.

3.4.2.3. Discussion.

Les mesures effectuées sont ajustées sur une fonction (40) représentative de l'équation de Frenkel (38).

$$\tau_r = a \cdot e^{10^4 \cdot b / T} \quad (40)$$

Les ajustements ainsi que les paramètres a et b qui en sont déduits sont présentés sur le graphique ci-dessous (Fig. 69).

Le temps de résidence mesuré peut être représentatif d'autres processus que le seul collage. Il peut aussi être influencé par l'effusion dans les aspérités de surface du graphite ou dans sa porosité. Ces processus interviennent aussi dans le cas de la cible d'un ECS. Le but de notre étude étant la détermination de paramètres transposables aux conditions de fonctionnement d'un ECS, la détermination de τ_r semble pertinente car contenant déjà ces effets. Les paramètres de l'équation de Frenkel (E_D l'enthalpie de désorption du couple atome/surface et τ_0 une constante de temps) correspondent à des conditions d'interaction atome-surface bien particulières auxquelles notre système ne satisfait pas. Par conséquent, ces paramètres ne pourraient être que difficilement extraits de a et b , et entachés d'une erreur importante. Néanmoins, ces ajustements permettront d'extrapoler le temps de résidence à d'autres températures que celles mesurées.

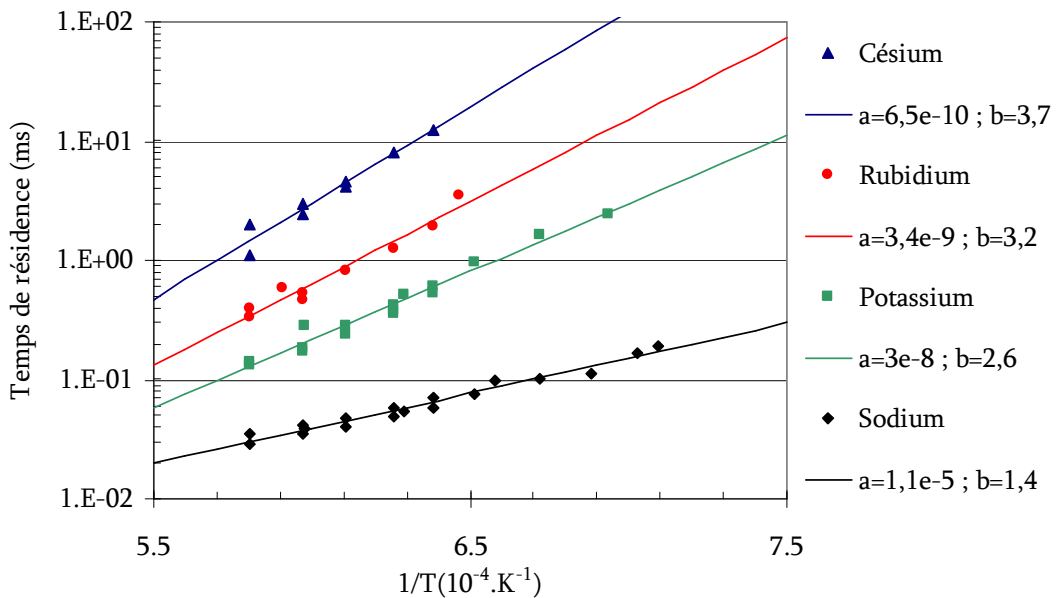


Fig. 69 _ Graphique représentant le temps de résidence des différents alcalins sur les parois de la cavité en carbone en fonction de l'inverse de la température. Les droites correspondent aux ajustements sur une fonction représentative de l'équation de Frenkel.

3.4.3. Mesure d'efficacité.

3.4.3.1. Principe de la mesure.

Le but de cette série de mesures est de déterminer l'efficacité totale de conversion des atomes en ions en fonction de l'alcalin étudié, mais aussi de la température, du champ électrique et du matériau du tube ioniseur. Malheureusement, ces paramètres ne peuvent pas tous être modifiés indépendamment. Lors des mesures, les moyens à notre disposition pour faire varier ces paramètres sont :

- Une variation de la puissance imposée au tube ioniseur. Celle-ci entraîne une variation de la température mais aussi du champ électrique puisque le chauffage du tube est effectué par effet Joule. Les calibrations permettant de relier la température au champ électrique sont présentées sur la figure (Fig. 63).
- Le remplacement du matériau du tube ioniseur. La relation entre le champ électrique et la température du tube ioniseur dépend de la valeur de sa résistance. Elle dépend de la géométrie du tube mais aussi de la résistivité électrique du matériau. De plus, le changement du matériau du tube modifie le travail de sortie de l'électron.
- Le changement de l'émetteur d'alcalins permet d'utiliser des atomes avec des potentiels d'ionisation différents.

Tous ces paramètres ont un impact sur l'efficacité de transformation des atomes en ions, par l'intermédiaire du champ électrique et de la probabilité d'ionisation par contact. Les différents liens existant entre ces paramètres sont récapitulés sur le schéma ci-dessous (Fig. 70).

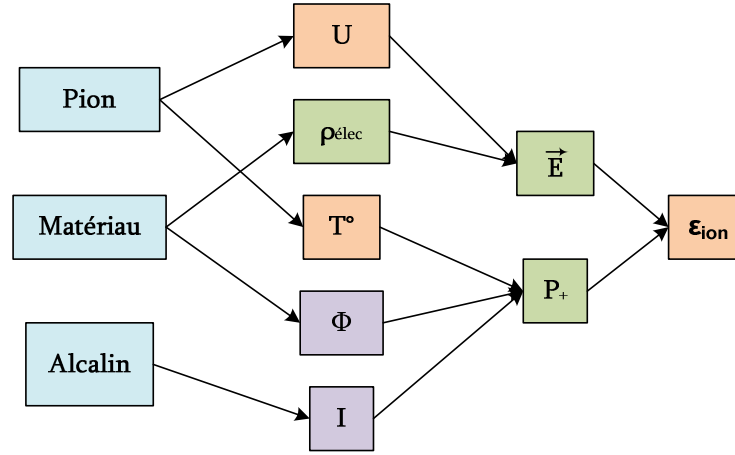


Fig. 70 _ Schéma présentant les relations entre les différents paramètres influençant l'efficacité de transformation des atomes en ions du système. P_{ion} représente la puissance imposée au tube ioniseur, U la tension aux bornes du tube, ρ_{elec} la résistivité du matériau, T° la température du tube, Φ le travail de sortie de l'électron du matériau, I le potentiel d'ionisation de l'alcalin, E le champ électrique, P_+ la probabilité d'ionisation par contact et ϵ_{ion} l'efficacité de transformation des atomes en ions du système. Les cadres en fond bleu représentent les paramètres modifiables au cours des mesures, en fond orange ceux qui sont mesurables, en fond vert ceux qui sont calculés et en fond violet ceux qui proviennent de données tabulées.

La suite de cette partie (3.4.3.3 et 3.4.3.4) met en lumière d'autres paramètres influençant l'efficacité totale de conversion du système.

Au cours de ces mesures, la puissance imposée sur le four est fixée à 1600 W (soit environ 1700 K) et l'on fait varier la puissance du tube ioniseur entre 200 W et 800 W pour le tube en carbone (soit environ 1500-2100 K) et entre 100 W et 600 W pour le tube en rhénium (soit environ 1650-2550 K). Les températures ainsi obtenues sont présentées sur la figure (Fig. 61). Une impulsion d'alcalins d'une durée de 100 ms est injectée sur la feuille placée dans la cavité à l'aide du canon à ions. La réponse en sortie du tube ioniseur est mesurée sur la coupelle de Faraday. Le signal est sommé sur plusieurs cycles de manière à diminuer le bruit de fond. La période d'injection du faisceau est choisie suffisamment longue pour que le signal récolté retombe à sa valeur initiale (ainsi les signaux ne sont pas empilés quand on les additionne). L'acquisition de ces impulsions est effectuée sur un oscilloscope. L'efficacité est déterminée par le rapport de la charge électrique collectée sur la charge électrique injectée. Le calcul est effectué à partir de la formule suivante :

$$\epsilon_{TOT} = \epsilon_{Eff-cavité} \cdot \epsilon_{ion} \cdot \epsilon_{Transp} = \frac{1}{A} \cdot \frac{\int I_{CF}(t).dt}{\int I_{HT}(t).dt - \int I_D(t).dt} \quad (41)$$

Cette formule montre que l'efficacité totale de transformation des atomes en ions du système « cavité + tube ioniseur » s'exprime par le produit de trois efficacités.

L'efficacité d'effusion dans la cavité correspond à la proportion des atomes qui effusent depuis la cavité vers le tube ioniseur. Les simulations effectuées à l'aide du code RIBO (voir l'annexe 2.3) ont permis d'estimer cette efficacité à 33%. La partie des éléments qui sortent du tube pour retourner dans la cavité peut repénétrer dans le tube ioniseur (avec une probabilité de 33%). Cet effet du second ordre sera négligé. Pour des éléments présentant une probabilité d'ionisation par contact élevée, la probabilité de retourner dans la cavité depuis le tube ioniseur est très faible dans les conditions de champ électrique de nos mesures.

Le second terme rend compte de l'efficacité d'ionisation du tube seul.

Enfin, ϵ_{Transp} désigne l'efficacité de transport de la ligne. Celle-ci ne peut pas être mesurée avec le banc de test utilisé, mais elle est considérée proche de 100%. En effet, l'émittance habituellement observée en sortie des sources à ionisation de surface est faible [176]. De plus, avec la source ECR Nanogan dont l'émittance est de l'ordre de $100 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$ et qui débite des courants 100 fois supérieurs à ceux de la SIS, le transport observé sur ce banc est de l'ordre de 85%.

Dans la seconde partie de la formule (41), A désigne l'abondance naturelle de l'isotope récolté sur la coupelle de Faraday. En effet, le faisceau d'alcalins délivré par le canon à ions est composé de l'ensemble des isotopes naturels. En sortie du tube ioniseur, le dipôle magnétique permet de sélectionner l'unique isotope à envoyer sur la coupelle de Faraday. Les termes $\int I_x$, représentent la valeur de l'intégrale de l'impulsion de courant mesurée sur la coupelle de Faraday I_{CF} , sur la plate forme 1 kV I_{HT} ou sur le diaphragme I_{D} . Ces différents courants sont représentés sur le schéma électrique simplifié de la figure (Fig. 60). Pour connaître le courant réellement injecté dans la cavité, il est nécessaire de soustraire au courant I_{HT} le courant I_{D} . Il est important de signaler que pour chacune des mesures, les réglages optiques du canon à ions ont été optimisés, afin de minimiser le courant déposé sur les différentes électrodes du canon à ion I_{EXT} , I_{L} et I_{D} . Ceci permet de réduire l'erreur sur la mesure de ces courants engendrée par une éventuelle émission électronique, due à la collision des ions sur les différentes électrodes.

Les différentes résistances de lecture de courant ainsi que les gains des convertisseurs EOE utilisés pour l'acquisition des signaux I_{HT} et I_{D} ont été mesurés précisément, afin de limiter les erreurs systématiques (voir l'annexe 2.5).

L'erreur relative $\Delta \epsilon_{\text{Ion}}$ commise sur la mesure de l'efficacité d'ionisation est donnée par les équations suivantes (42).

$$\Delta \varepsilon_{\text{Ion}}^2 = \Delta \varepsilon_{\text{TOT}}^2 + \Delta \varepsilon_{\text{Eff-cavité}}^2 + \Delta \varepsilon_{\text{Transp}}^2$$

$$\Delta \varepsilon_{\text{TOT}}^2 = \Delta A^2 + \Delta \left(\frac{\int I_{\text{CF}}(t).dt}{\int I_{\text{HT}}(t).dt - \int I_{\text{D}}(t).dt} \right)^2 \quad (42)$$

Avec

$\Delta \varepsilon_{\text{TOT}}$: Erreur relative sur la mesure de l'efficacité totale.

$\Delta \varepsilon_{\text{Eff-cavité}}$: Erreur relative sur l'efficacité d'effusion dans la cavité. Dans des conditions géométriques similaires à celle du dispositif, les écarts constatés sur les résultats des simulations RIBO (voir l'annexe 2.3) sont inférieurs à 7%.

$\Delta \varepsilon_{\text{Transp}}$: Erreur relative sur la mesure de l'efficacité de transport. L'expérience de l'utilisation de ce banc de test permet d'estimer qu'elle est inférieure à 5%.

ΔA : Erreur relative sur l'abondance. Elle est négligée.

$\Delta \left(\frac{\int I_{\text{CF}}(t).dt}{\int I_{\text{HT}}(t).dt - \int I_{\text{D}}(t).dt} \right)$: Erreur relative sur la mesure des courants. L'erreur

pouvant être engendrée par le système d'acquisition des courants, conduit à estimer cette erreur inférieure à 5%.

Par conséquent, l'erreur commise sur la mesure de l'efficacité d'ionisation est inférieure à 10%. Les barres d'erreurs n'ont pas été reportées sur les graphiques suivant pour une question de lisibilité.

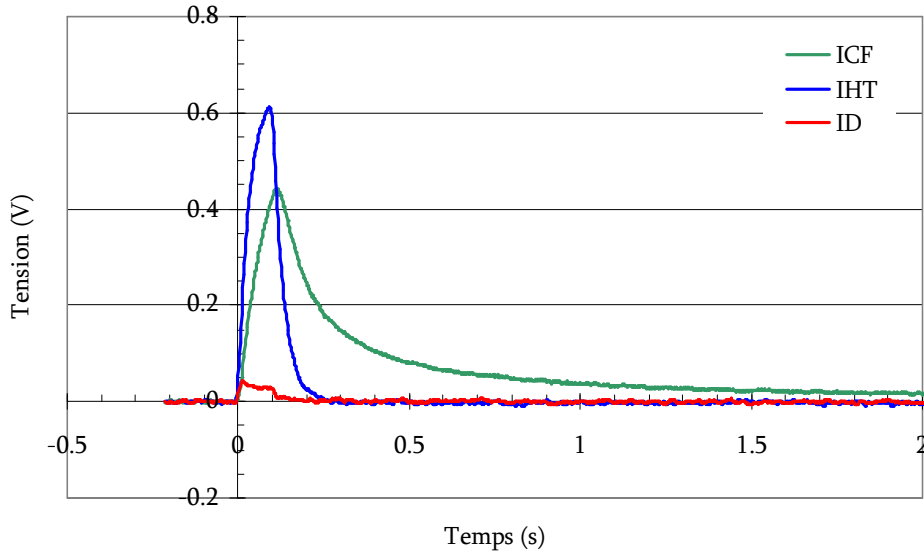


Fig. 71 _ Exemple de mesure réalisée pour le potassium avec le tube en rhénium à une température de 1670 K. En bleu, l'impulsion I_{HT} , en rouge I_{D} et en vert I_{CF} . Ces données sont brutes ; en ordonnée est donc représentée une tension (intensité au cours de l'impulsion multipliée par la résistance de lecture).

Le graphique Fig. 71 présente un exemple d'impulsions mesurées qui seront intégrées pour effectuer le calcul d'efficacité. Le courant récolté sur le diaphragme est très faible car l'optique a été optimisée pour minimiser ce courant. Le signal I_{HT} présente une réponse plus lente que I_D car le filtre 50 Hz retarde la lecture du signal. L'impulsion récoltée sur la CF est encore plus lente car elle est retardée par l'ensemble du système « cavité + tube ioniseur ».

3.4.3.2. Résultats.

Le graphique (Fig. 72) est obtenu en effectuant ce type de mesures pour cinq alcalins : le césium, rubidium, potassium, sodium et lithium pour des tubes ioniseurs en carbone et en rhénium et en faisant varier la puissance du tube ioniseur.

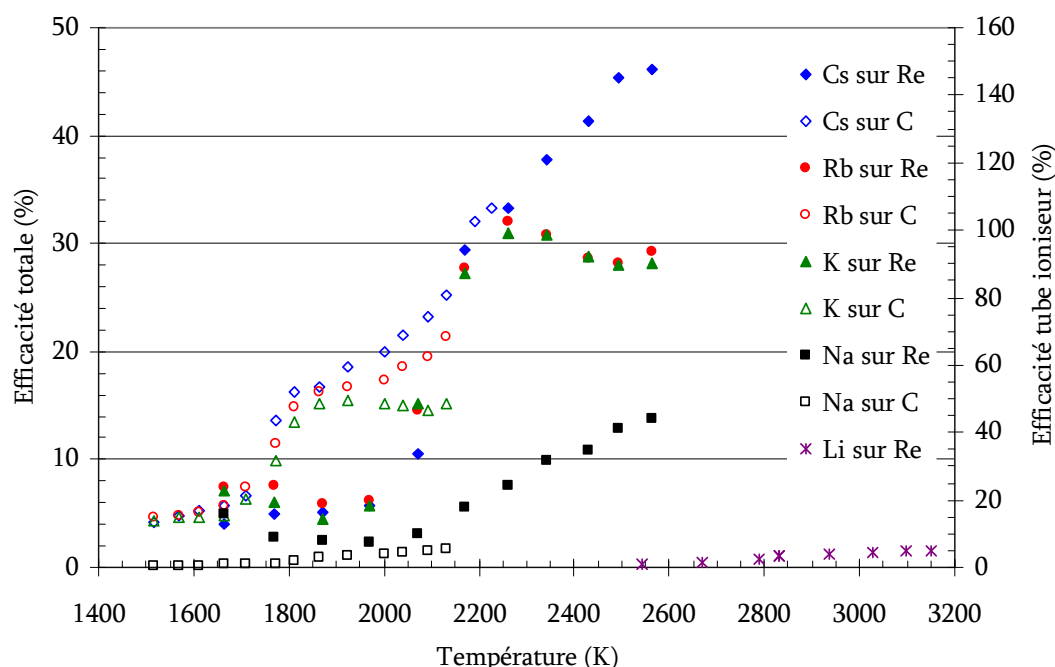


Fig. 72 _ Graphique présentant l'efficacité totale du système (échelle de gauche) et l'efficacité du tube ioniseur seul (échelle de droite) en fonction de la température du tube ioniseur. L'efficacité a été mesurée pour le césium (losange), le rubidium (cercle), le potassium (triangle), le sodium (carré) et le lithium (étoile). Les points pleins correspondent à un tube ioniseur en rhénium et les points creux à un tube en carbone.

Lors des mesures sur le tube en carbone, la température a été limitée à 2200 K pour limiter le taux d'évaporation (10 μm par mois pour du carbone POCO, [143]). Avec le tube en rhénium, des températures plus élevées (2600 K) sont imposées. La dernière série de mesures a été réalisée avec le lithium. Les efficacités mesurées étant très faibles, la puissance imposée sur le tube ioniseur a été fortement augmentée (jusqu'à 1200W). Les températures présentées pour le

lithium sont issues d'extrapolation des abaques de température (Fig. 61). Les faibles efficacités mesurées pour le lithium (inférieures à 2%) n'ont pas pu être expliquées.

Pour une température de tube inférieure à 1750 K, les efficacités totales sont proches et toutes inférieures à 10%. A des températures plus élevées, l'efficacité augmente rapidement avec le tube en carbone. Pour le Cs, Rb et K l'efficacité est plus élevée pour le tube en carbone entre 1750 K et 2150 K. C'est seulement à partir de 2100 K que l'efficacité augmente avec le tube en rhénium pour ces mêmes éléments. Les tendances suggèrent que pour des températures supérieures à 2300 K, les meilleures efficacités seraient obtenues avec le tube en rhénium. L'efficacité totale pour le sodium reste faible, inférieure à 15% avec le rhénium et inférieure à 2% avec le carbone.

3.4.3.3. Influence du champ électrique dans la cavité.

Sur le graphique (Fig. 72), l'efficacité du tube ioniseur en rhénium, calculée pour l'ionisation du césium à une température supérieure à 2400 K, est supérieure à 100%. Cet effet n'est observé que pour le césium avec le tube ioniseur en rhénium. Pour tous les autres éléments, l'efficacité d'ionisation du tube semble saturer à une valeur proche de 100% à haute température.

Ceci ne peut pas s'expliquer par le retour des alcalins dans la cavité après leur sortie par l'orifice opposé au tube ioniseur. Tout d'abord, une polarisation est imposée entre la cavité et le diaphragme, celle-ci s'oppose au retour des ions. De plus, les atomes se trouvent dans un grand volume et ont une faible probabilité de re-pénétrer dans la cavité. Enfin, si cet effet avait lieu, il serait observé pour tous les alcalins.

L'explication est autre : à cette température de la cavité (1700 K) la plupart des atomes de césium est ionisée dans la cavité en carbone (la probabilité d'ionisation par contact P_+ vaut 97% si l'on prend un travail de sortie de l'électron de 4,5 eV pour le graphite). Pour une puissance de 400 W sur le tube ioniseur, le champ électrique créé peut être suffisamment important pour pénétrer dans la cavité et extraire une partie des ions créés vers le tube. La proportion des alcalins sortants vers le tube ioniseur augmente et ne respecte plus un simple rapport de conductances, d'où une efficacité d'ionisation supérieure à 100%. Cet effet n'est pas observé avec le tube ioniseur en carbone car les pièces en carbone qui permettent l'alimentation en courant imposent une zone de 4 mm sans champ électrique entre le tube ioniseur et la cavité. Néanmoins, on pourrait se demander pourquoi cet effet n'apparaît pas pour le rubidium et le potassium ? En effet, ils présentent respectivement une probabilité d'ionisation par contact sur le graphite de 82% et 60% (à 1700 K et $\Phi = 4,5$ eV). La présence d'alcalins à la surface de métaux entraîne une réduction du travail de sortie de l'électron de ce métal. Cet

effet est bien connu pour le graphite et couramment appliqué pour rendre les électrodes polarisées moins électro-émissives [192]. La formation d'une couche d'alcalins en surface du graphite peut conduire à une importante diminution du travail de sortie de l'électron pouvant aller jusqu'à 2,44 eV [193] dans le cas du césium. Sans aller jusque là, la diminution du travail de sortie du graphite de 4,5 à 4 eV conduit déjà à une diminution significative des probabilités d'ionisation par contact du césium, rubidium et potassium qui valent alors respectivement 51%, 13% et 5% (à 1700 K).

Dans notre cas, il est difficile de quantifier l'importance de cet effet et nous choisissons de ne pas en corriger les résultats de la Fig. 72. La présence de cet effet dans nos conditions d'expérience a cependant été mise en évidence au travers de l'influence du courant injecté sur la mesure d'efficacité.

3.4.3.4. Influence de l'intensité du courant injecté sur la mesure d'efficacité.

Une série de mesures a été menée afin de contrôler l'influence de l'intensité d'ions alcalins injectés sur l'efficacité. Ces mesures ont été effectuées avec le tube en rhénium pour une puissance ioniseur de 500 W et une puissance four de 1600 W soit une température ioniseur de 2440 K et une température cavité de 1700 K. Il apparaît sur le graphique (Fig. 73) que cet effet est substantiel.

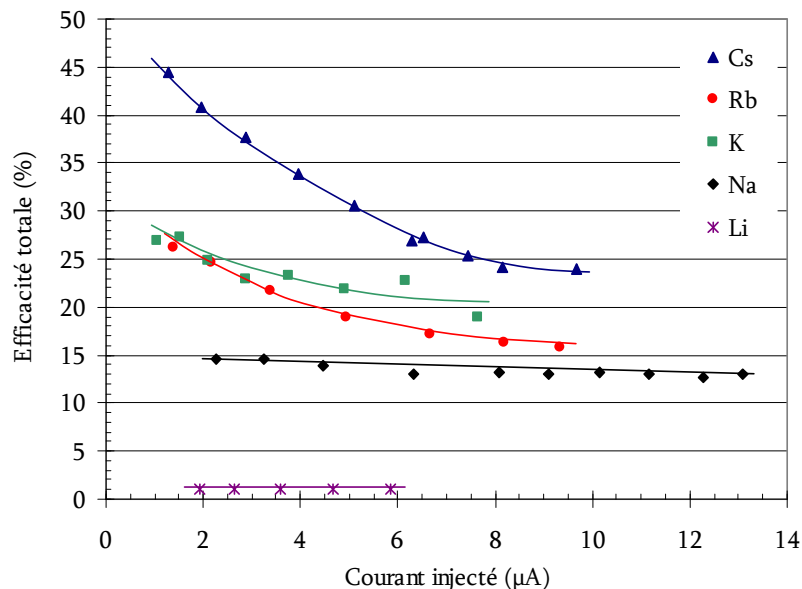


Fig. 73 _ Graphique présentant l'efficacité totale du système en fonction du courant injecté dans la cavité. L'efficacité a été mesurée pour le césium (losange), le rubidium (cercle), le potassium (triangle), le sodium (carré) et le lithium (étoile). Les lignes ne sont là que pour guider l'œil.

L'efficacité de transformation d'atomes en ions diminue lorsque l'intensité du courant injecté augmente. Pour le césium, l'efficacité peut varier d'un facteur 2 en fonction du courant injecté. Pour le rubidium et le potassium, l'efficacité ne varie plus que d'un facteur 1,5. Pour le sodium cette variation est faible, elle est presque négligeable pour le lithium.

D'importantes quantités d'alcalins seront produites dans la cible d'UCx de SPIRAL 2. L'ordre de grandeur des taux de production dans la cible est estimé à $1 \mu\text{A}$ pour les alcalins. Cette estimation est réalisée à partir des données de Lhersonneau *et al.* [194] pour $1,6 \times 10^{13}$ fissions par secondes dans une cible UCx de densité 11 g/cm^3 . Ces courants peuvent être nettement plus faibles si la taille de la cible est réduite ou si l'intensité du faisceau primaire est plus faible. De plus, ils correspondent aux taux dans la cible et ne prennent pas en compte les pertes au cours du processus de diffusion. Néanmoins, cet effet semble important, lors de la conception du prototype de la source à ionisation de surface de SPIRAL 2, nous nous efforcerons d'en minimiser l'impact.

3.4.3.5. Influence de l'intensité du courant injecté sur le temps de réponse.

Les deux graphiques de la figure (Fig. 74) présentent l'évolution de l'intégrale de l'impulsion récoltée sur la coupelle de Faraday en fonction du temps pour deux alcalins. Pour le césium (pour lequel l'efficacité varie beaucoup avec le courant injecté), le temps de réponse des impulsions mesurées augmente avec la quantité d'alcalins injectés. Pour le lithium, dont l'efficacité n'est pas influencée par le courant injecté, le temps de réponse reste inchangé.

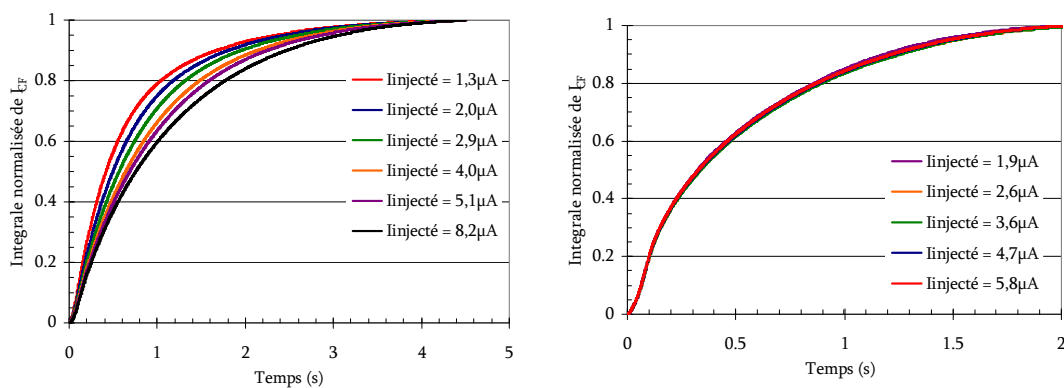


Fig. 74 _ Graphiques présentant l'évolution de l'intégrale de l'impulsion récoltée sur la coupelle de Faraday en fonction du temps. Les différentes courbes ont été mesurées pour différentes intensités de faisceau injecté. Le graphique de gauche a été réalisé pour le césium et celui de droite pour le lithium.

Lorsque le courant d'alcalins injecté augmente, la quantité qui est déposée sur les parois du tube ioniseur sera plus importante. Le travail de sortie de l'électron de cette surface décroît et ainsi la probabilité d'ionisation par contact diminue. Le temps de réponse augmente car les éléments étant moins bien ionisés, ils passent plus de temps dans la cavité ou dans le tube ioniseur.

Sur la figure (Fig. 72), pour un alcalin donné, les évolutions de l'efficacité présentées en fonction de la température peuvent être faussées car au cours des mesures le courant injecté varie lui aussi. En effet, l'augmentation de la température du tube peut entraîner celle de l'émetteur d'alcalins par rayonnement. Par conséquent, s'il n'a pas été corrigé, le flux d'alcalins peut augmenter. Celui-ci peut aussi diminuer si l'émetteur commence à s'épuiser.

3.4.3.6. Correction d'efficacité à appliquer en fonction du flux d'ions injecté.

Il a été mis en évidence que les évolutions des efficacités présentées sur le graphique (Fig. 72) sont biaisées car elles n'ont pas toutes été obtenues pour les mêmes intensités de courants injectés. Pour pouvoir être comparées, elles sont rapportées à un même courant injecté de 6 μA . Le calcul de la correction est présenté ci-dessous (43) :

$$\varepsilon_{COR}(xW, 6\mu A) = \varepsilon_{DATA}(xW, y\mu A) \cdot \frac{\varepsilon(500W, 6\mu A)}{\varepsilon(500W, y\mu A)} \quad (43)$$

Avec :

$\varepsilon_{COR}(xW, 6\mu A)$: Efficacité corrigée pour un courant injecté de 6 μA et pour une puissance de x W sur le tube ioniseur

$\varepsilon_{DATA}(xW, y\mu A)$: Efficacité non corrigée, issue des mesures d'efficacité en fonction de la température du tube ioniseur. Valeur pour un courant injecté de y μA et une puissance de x W sur le tube ioniseur.

$\varepsilon(500W, 6\mu A)$: Efficacité mesurée pour un courant injecté de 6 μA et pour une puissance de 500 W sur le tube ioniseur. Valeur issue de la mesure d'efficacité en fonction du courant injecté.

$\varepsilon(500W, y\mu A)$: Efficacité mesurée pour un courant injecté de y μA et pour une puissance de 500 W sur le tube ioniseur. Valeur issue de la mesure d'efficacité en fonction du courant injecté.

Ces corrections ne sont pas parfaites puisqu'elles s'appuient sur une série de mesures effectuées à une puissance unique (500 W) sur le tube ioniseur. La correction à 6 μA sera quelque peu faussée à plus basse puissance sur le tube ioniseur car les charges s'écoulant alors moins vite (champ électrique plus faible),

le phénomène de saturation devrait être plus prononcé. L'efficacité réelle risque d'être un peu plus faible que celle donnée par la correction pour des puissances sur le ioniseur inférieures à 500W.

Ces mesures de référence ont été effectuées sur le tube ioniseur en rhénium. La variation de l'efficacité avec le flux d'alcalins injecté a été attribuée à un dépôt d'alcalins en surface du tube qui diminue le travail de sortie de l'électron de cette surface. Il est peu probable que cet effet soit identique sur une surface en rhénium et en carbone. Toutefois, la calibration n'ayant pu être faite pour le tube en carbone, la correction sera appliquée aussi aux efficacités mesurées avec ce tube, ce qui est en toute rigueur incorrect.

Les deux graphiques (Fig. 75) présentent l'évolution de l'efficacité en fonction du champ électrique du tube ioniseur après avoir appliqué la correction présentée précédemment. Un second axe a été ajouté pour donner une indication de la température du tube. Il est issu d'un ajustement par une fonction linéaire du graphique (Fig. 63), approximation convenable sur cette gamme de température.

Il apparaît que pour la plupart des alcalins, une augmentation brusque de l'efficacité est observée à une température de 1750 K pour le tube en carbone et 2100 K pour le tube en rhénium.

A ce stade, le lecteur pourrait se demander pourquoi à basse température l'efficacité d'ionisation du césium sur le rhénium n'est pas de 100% ? En effet, à cette température la probabilité d'ionisation par contact est proche de 100%. Un élément de réponse peut être apporté à l'aide du code Monte Carlo décrivant le tube (voir l'annexe 2.1). Le graphique (Fig. 47) montre que même pour une probabilité d'ionisation par contact de 100%, la probabilité de sortir du tube ioniseur sous forme d'ions n'est pas de 100% si le champ électrique est faible.

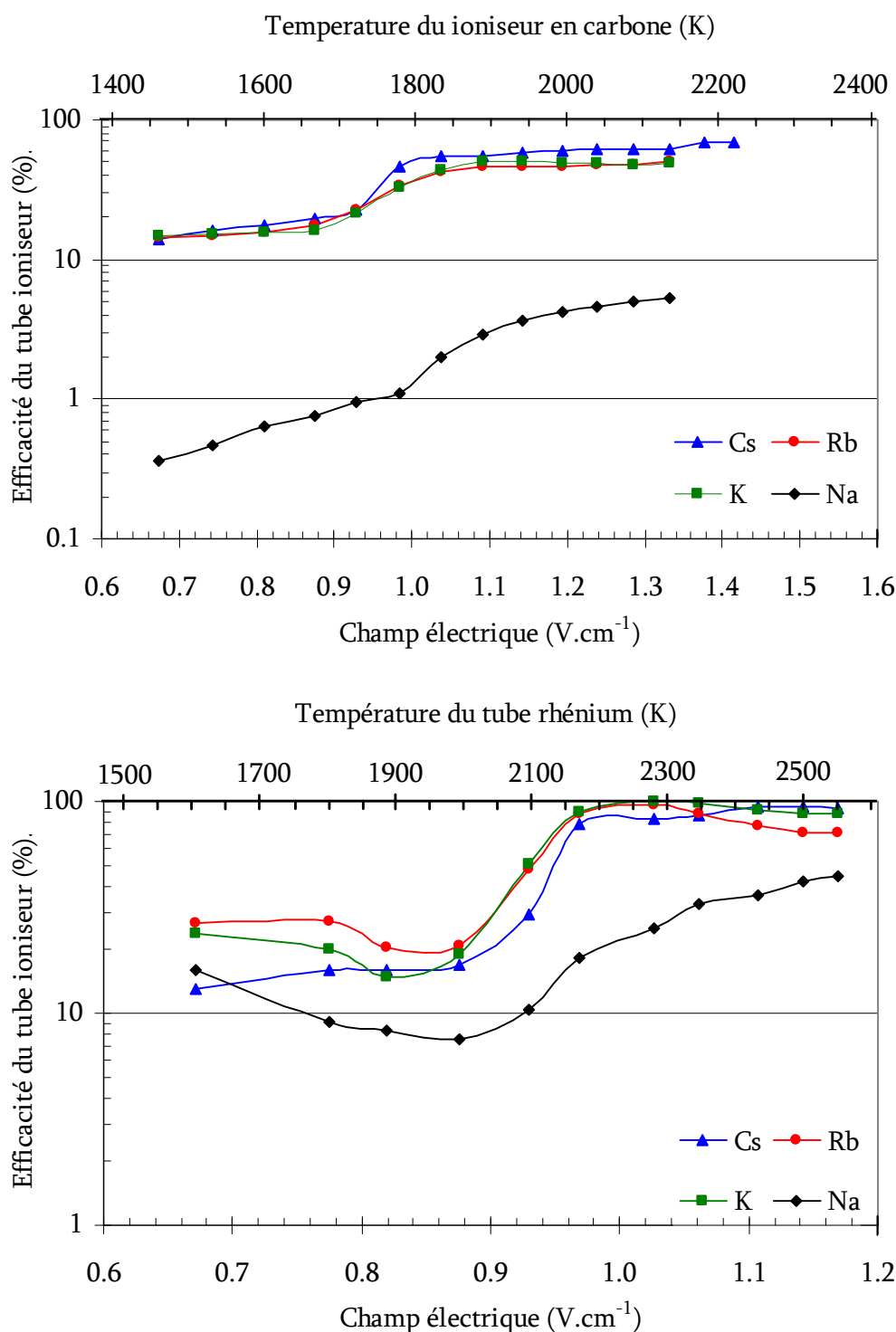


Fig. 75 _ Graphiques présentant l'efficacité du tube ioniseur seul (figure du haut pour le tube en carbone et figure du bas pour le tube en rhénium) en fonction de la température et du champ électrique dans le tube ioniseur. L'efficacité a été mesurée pour le césium (triangle), le rubidium (cercle), le potassium (carré) et le sodium (losange).

Sur la figure (Fig. 76), les deux graphiques précédents sont superposés. On constate qu'une augmentation plus rapide d'efficacité a lieu dans tous les cas pour un champ électrique allant de 0,88 à 1,06 V.cm⁻¹. Ce graphique démontre clairement l'importance de l'application d'un champ électrique dans le tube ioniseur. Pour une même valeur de champ électrique, les performances du tube ioniseur en rhénium sont meilleures que celles du tube ioniseur en carbone.

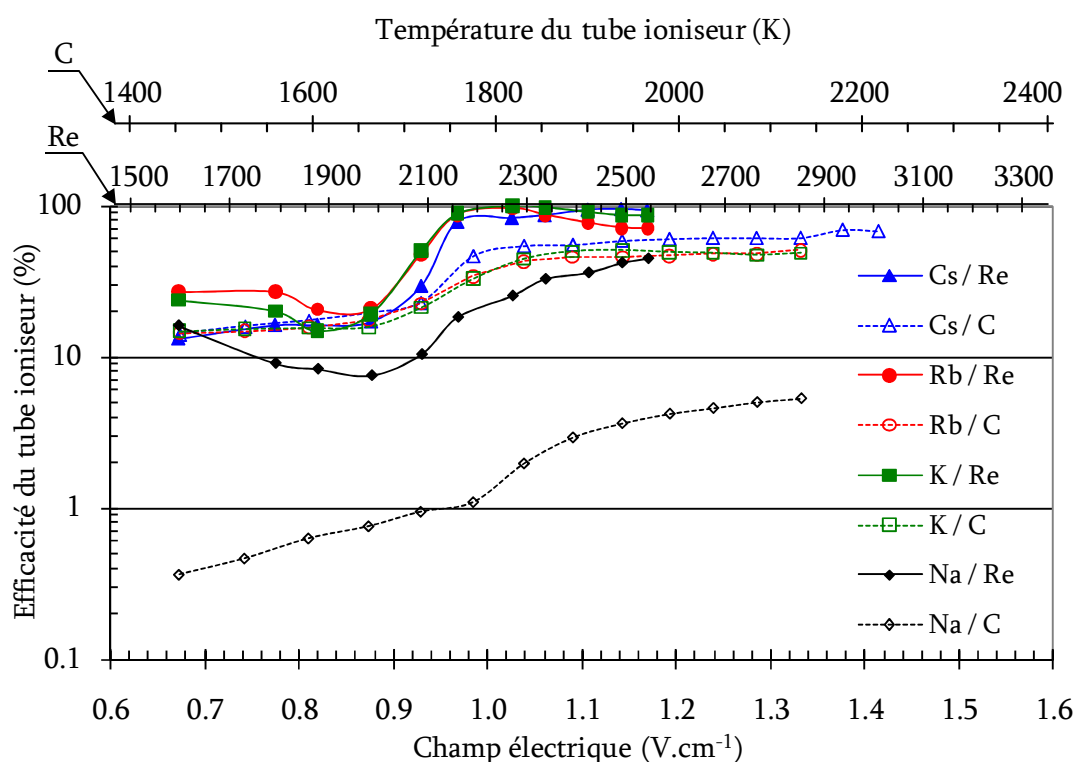


Fig. 76 _ Graphique présentant l'efficacité du tube ioniseur seul en fonction du champ électrique et de la température dans le tube ioniseur. L'efficacité a été mesurée pour le césium (triangle bleu), le rubidium (cercle), le potassium (carré vert), le sodium (losange noir). Les points pleins correspondent à un tube ioniseur en rhénium et les points creux à un tube en carbone.

3.5. Conclusions des mesures effectuées sur SISTHE.

La campagne de mesures effectuées sur le dispositif SISTHE s'est avérée riche en résultats, ce paragraphe récapitule les plus marquants.

Une première série de mesures a consisté à mesurer le temps de réponse du tube ioniseur en carbone seul. Celui-ci diminue lorsque la température et le champ électrique augmentent. Pour des températures supérieures à 1600 K, le temps de réponse à 50% du tube ioniseur est inférieur à 60 ms. Il apparaît que ce

temps augmente avec la masse de l'élément, mais pas selon la racine du rapport des masses. Cet effet a été attribué au collage des alcalins sur la surface du tube.

Une seconde série de mesure a permis de mesurer le temps de résidence des alcalins sur une surface de graphite en fonction de sa température. Il a été observé que ce temps diminue avec l'augmentation de la température et avec la masse de l'alcalin. Dans une gamme de températures allant de 1400 K à 1700 K, tous les temps de résidence sont compris entre 30 μ s et 1,3 ms. Les valeurs calculées en multipliant ces temps de résidence par une estimation du nombre de collisions dans le tube sont proches des temps de réponse du tube ioniseur mesurés précédemment. Les temps de résidence ont été ajustés sur une fonction représentative de l'équation de Frenkel. Cet ajustement est satisfaisant, il permettra d'extrapoler le temps de résidence pour d'autres températures.

Enfin, la dernière série de mesure a consisté à mesurer l'influence de nombreux paramètres sur l'efficacité d'ionisation du système. La variation de l'efficacité avec le courant d'alcalins injecté a été mise en évidence. Elle peut être divisée par deux pour un courant injecté passant de 2 à 10 μ A. Cet effet a été attribué à une diminution du travail de sortie de l'électron de la surface du tube ioniseur dû à un dépôt d'alcalins. L'efficacité a aussi été mesurée en fonction de la température et du champ électrique du tube. Une brusque augmentation de l'efficacité a été observée pour un champ électrique proche de 1 V.cm⁻¹. L'utilisation d'un tube ioniseur en rhénium conduit à de meilleures efficacités car il peut être porté à plus haute température. Pour des températures supérieures à 2200K, les efficacités mesurées, avec le tube ioniseur en rhénium, pour le potassium, rubidium et césium sont proches de 100% et supérieures à 20% pour le sodium.

La réalisation d'un tube ioniseur en rhénium pour SISTHE a permis de démontrer qu'il était possible de mettre en forme et de souder de fines feuilles de rhénium (125 μ m). Ce succès technique démontre qu'il est possible de réaliser un tube ioniseur avec un fort champ électrique (> 1 V.cm⁻¹) et un matériau présentant un fort travail de sortie de l'électron dans une géométrie standard pour une SIS. Cela permet aussi d'envisager la réalisation de tubes de formes plus complexes. Suite au démontage de la source, il a été constaté que le tube ioniseur en rhénium était en parfait état, et ce après de nombreuses heures de fonctionnement à 2600 K (600 W) et un palier de quelques minutes à 1200 W (la température estimée par extrapolation est supérieure à 3100 K). Aucune déformation ni trace de carburation du tube n'ont été observées.

L'ensemble de ces résultats constitue de précieuses indications pour mener la conception du premier prototype de SIS pour SPIRAL 2.

4. Développement d'un premier prototype de la SIS pour le projet SPIRAL 2.

Rappelons que la SIS (Source à Ionisation de Surface) développée pour le projet SPIRAL 2 est dédiée à la production d'alcalins et alcalino-terreux, issus des réactions de fissions dans la cible d'UCx, majoritairement les césiums, rubidium, baryum et strontium. La conception de ce premier prototype ne prend pas en compte la possibilité de couplage de la source avec une cible de production d'autres alcalins plus légers. La production d'éléments plus légers que ceux produits dans la cible d'UCx est étudiée au sein du groupe de travail « autres faisceaux-autres cibles » (le 1^{er} chapitre de cette thèse présente une partie des développements menés par ce groupe de travail). A l'heure actuelle, il n'y a pas de cible définie permettant de produire des alcalins plus légers. La conception de la source à ionisation de surface permettant d'ioniser ces éléments devra débiter une fois la cible de production définie. Il va sans dire que les résultats présentés dans la partie précédente (3.4) seront utiles à la conception de cette future source et qu'elle pourra s'inspirer largement de la source conçue pour la cible d'UCx.

4.1. Conception.

Actuellement, il existe un module de production unique pour la cible d'UCx. Il est possible de mettre différents ECS dans ce module et ses configurations géométriques sont multiples. Le point d'extraction de la source peut être déplacé selon l'axe de la ligne de faisceau basse énergie. Il est aussi possible de modifier la distance entre le point d'entrée de la cible et cet axe. Du point de vue de la SIS, la configuration la plus pénalisante correspond au cas où le point d'entrée de la cible UCx est éloigné de l'axe de ligne basse énergie (BE) car cela implique d'avoir un tube de transfert plus long. Les tests seront effectués dans cette configuration, les résultats ainsi obtenus constitueront une minoration des performances attendues dans le module de production définitif.

L'ensemble constitué par la SIS et la cible d'UCx doit s'intégrer dans la boîte des ECS de SPIRAL 2 [195]. Le changement des ECS avec une cible d'UCx est une opération lourde, il nécessite de changer le module de production, intervention estimée à trois semaines. Afin d'optimiser le nombre de changements des ECS, il a été décidé d'étudier une SIS qui serait aussi utilisable pour l'ionisation laser.

La source à ionisation de surface est composée de deux parties, une partie dans l'axe de la cible d'UCx appelée tube de transfert et une partie dans l'axe BE appelée tube ioniseur. Du point de vue des matériaux, les résultats obtenus avec SISTHE ont démontrés les avantages de l'utilisation du rhénium (parties 3.4.3 et

3.5). Ces tests ont aussi mis en évidence l'importance d'appliquer un champ électrique dans la cavité cible, le tube de transfert et le tube ioniseur (3.4.3.3 et 3.4.3.6). Ces tubes sont donc fabriqués à partir de fines feuilles de rhénium pliées puis soudées. La conception est menée avec les deux épaisseurs disponibles commercialement de feuille de rhénium : 75 et 125 μm . Pour des épaisseurs plus importantes, le champ électrique calculé est trop faible, et pour des épaisseurs plus faibles la réalisation mécanique est trop complexe. L'angle entre le tube de transfert et le tube ioniseur est de 90° . Pour former ce coude, il est plus simple mécaniquement de faire des tubes de section carrée ou rectangulaire. Ci-dessous, la vue en coupe de l'ensemble du système (Fig. 77), présente les différents éléments décrit dans la suite.

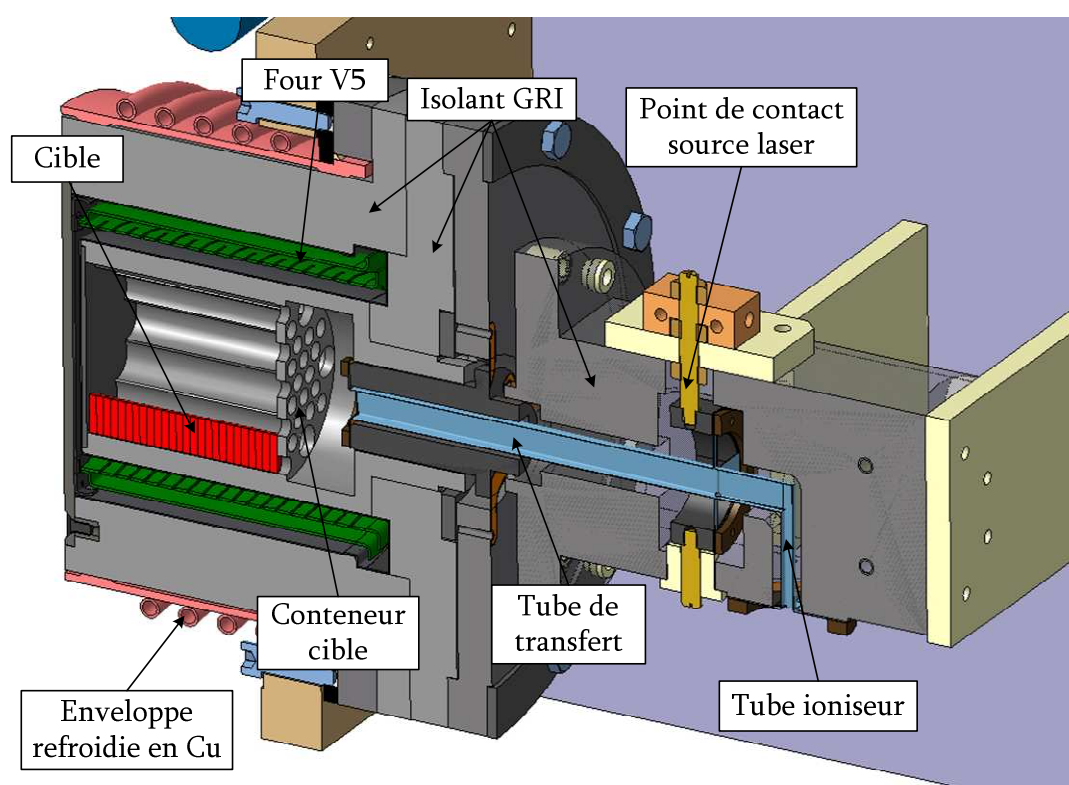


Fig. 77 _ Vue en coupe de la SIS couplée au four V5 [196,197] de la cible UCx. L'isolant GRI est une couverture rigide faite de fibres de carbone.

4.1.1. Tube ioniseur.

Les tests précédents (3.4.3.4) ont montrés une diminution de l'efficacité et une augmentation du temps de réponse avec le flux d'alcalins. Cette observation interprétée comme le résultat d'un dépôt d'alcalins en surface sera atténué en augmentant la surface du tube. Ce résultat nous a incités à utiliser une section de tube plus importante que pour SISTHE. Toutefois, la section doit être limitée afin

de ne pas augmenter inutilement l'émittance. En termes d'émittance, le faisceau délivré par la source ECR MONOBOB (source à BOBbines pour ions-MONO-chargés) est dimensionnant pour l'optique de la ligne BE. Le diamètre de l'orifice de l'électrode plasma de cette source est de 7 mm et le courant délivré de l'ordre de 1 mA. Par conséquent, pour la SIS, un tube de $5 \times 5 \text{ mm}^2$ présente une section proche et le courant attendu en sortie étant plus faible, l'émittance du faisceau devrait être compatible avec l'acceptance ($80 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$) de la ligne prévue pour le faisceau issu de la source ECR.

La source doit être compatible avec la production par ionisation laser. Dans les sources laser, la longueur du tube dans lequel le laser interagit avec les atomes dépend des caractéristiques du laser employé. Pour les lasers qui seront utilisés sur SPIRAL 2, la longueur optimale est comprise entre 5 cm et 10 cm [198,199]. Un tube plus court conviendrait pour l'ionisation de surface des alcalins. En effet, les atomes de Cs et Rb qui nous intéressent plus particulièrement présentent une probabilité d'ionisation par contact proche de 100%. Pour les alcalino-terreux, cette probabilité étant plus faible, un tube plus long est nécessaire. Des calculs effectués avec le code présenté en annexe 2.1, montrent que 5 cm est proche de la longueur optimale pour ces éléments, c'est donc cette longueur qui est choisie.

Le tube de transfert et le tube ioniseur sont reliés en série. La section de sortie du tube ioniseur a été limitée à $5 \times 5 \text{ mm}^2$ pour des raisons de faisceaologie mais côté cible, le tube de transfert peut présenter une section plus importante pour aider au transport des ions. En mode SIS le même courant s'écoule dans le tube de transfert et le tube ioniseur. Puisque le tube ioniseur est de plus faible dimension, il faut que sa paroi soit plus épaisse pour augmenter sa section conductrice.

L'épaisseur de la feuille choisie pour réaliser le tube ioniseur est donc de 125 μm , ce qui facilitera la réalisation complexe de cette partie. L'épaisseur de la paroi du tube de transfert sera de 75 μm .

La température du tube ioniseur est un des critères dimensionnant crucial, l'objectif est d'atteindre 2500 K. Il faut appliquer environ 600 W (soit une densité de puissance par unité de surface rayonnante de $1,6 \text{ W} \cdot \text{mm}^{-2}$) sur le tube ioniseur en rhénium de SISTHE pour atteindre cette température. Pour obtenir la même température sur le tube ioniseur de la SIS de SPIRAL 2, il faudra y appliquer la même densité de puissance, soit 1400 W au total. En considérant que la résistivité électrique du rhénium à haute température vaut $98,9 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ [200], la résistance du tube est alors estimée à 17,4 m Ω pour une épaisseur de tube de 125 μm . Pour une puissance de 1400 W, le couple courant tension alors appliqué est de 284 A / 5 V.

4.1.2. Tube de transfert.

La longueur du tube de transfert est fixée par la distance entre le conteneur cible et l'axe BE. Elle est d'environ 18 cm.

La section du tube de transfert est conique. En effet, du côté du tube ioniseur la section est faible et côté cible la section doit être plus ouverte pour faciliter le passage des ions de la cavité cible vers le tube. L'implication directe est un dépôt de puissance par effet Joule plus faible en début de tube de transfert (section de passage du courant plus importante) qu'en fin de tube. Cette différence de dépôt de puissance sera atténuée par le rayonnement en provenance du four, plus important en début de tube.

La section de passage du courant à la sortie du tube de transfert doit être égale à celle du tube ioniseur pour que le dépôt de puissance et donc la température soient identiques. Les épaisseurs des feuilles étant choisies pour ces deux tubes et la section du tube ioniseur étant fixée, la section du tube de transfert au point de liaison avec le tube ioniseur doit être de $5 \times 11,7$ mm. La section d'entrée du tube de transfert a été fixée à $11,7 \times 11,7$ mm pour maximiser son ouverture vers la cible tout en limitant la difficulté de réalisation technique.

La photo (Fig. 78) présente le tube de transfert et le tube ioniseur qui ont été réalisés à l'atelier mécanique du GANIL.

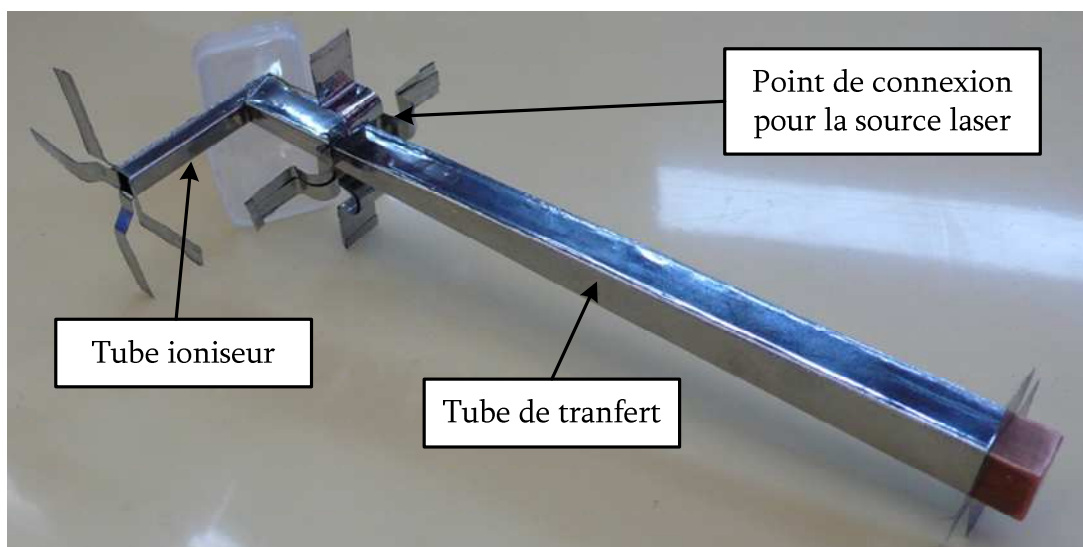


Fig. 78 _ Photo du tube de transfert et du tube ioniseur en rhénium réalisés au GANIL.

4.1.3. Point de connexion pour la source laser.

La source doit être compatible avec l'ionisation laser. Un des principaux avantages des sources lasers est la pureté des faisceaux délivrés. Or, les principaux polluants de ces sources sont les alcalins produits par ionisation de surface. Si la SIS est utilisée telle quelle pour l'ionisation laser, la contamination risque d'être

importante. Pour pallier à ce problème, un point de connexion électrique est ajouté 3 cm avant l'extrémité du tube de transfert. Il constitue un point critique du système. En effet, l'alimentation de ce point pourra conduire à un point froid. De plus, des calculs ont montrés que les contraintes thermomécaniques étaient concentrées dans cette zone qui constitue un point de fixation du tube. Une attention particulière a donc été apportée à la conception de cette zone pour atténuer ce point froid et les pattes de connexion ont été réalisées en forme Ω afin de mieux supporter les contraintes mécaniques. Côté cible, le raccordement du tube de transfert a été conçu de façon à permettre un débattement souple d'environ 5 mm selon la direction de l'axe du tube pour absorber la plus grande part de la dilatation du tube.

Pour l'ionisation de surface, le courant circulera dans le même sens dans les deux circuits ainsi créés. Pour l'ionisation laser, le courant circulera dans le sens inverse dans le tube de transfert, créant un champ électrique qui repoussera les alcalins vers la cavité cible. Dans le tube ioniseur, le courant circulera dans le même sens que pour la SIS, ainsi, les éléments ionisés par le laser seront guidés vers la sortie par le champ électrique. Le schéma (Fig. 79) illustre ces explications.

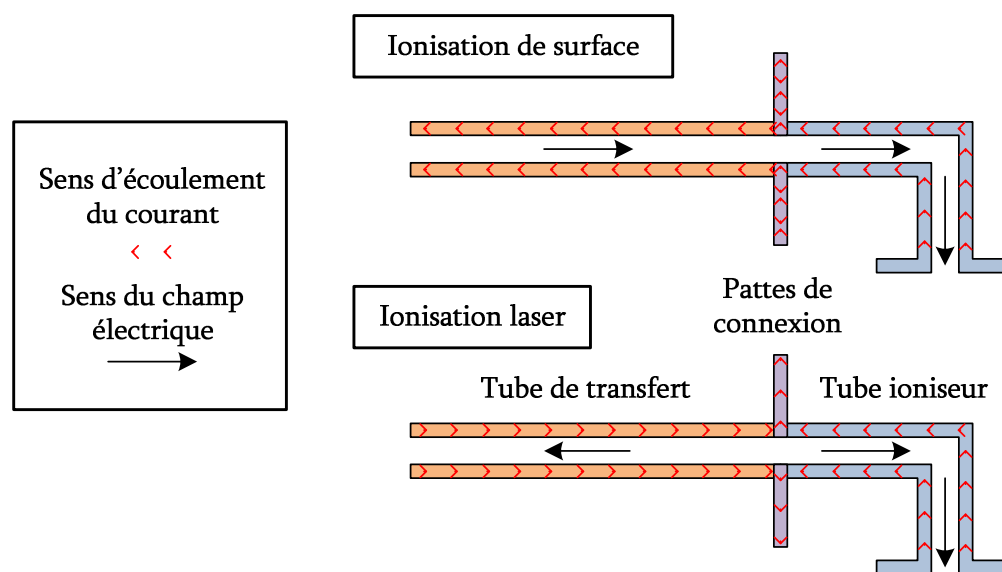


Fig. 79 _ Schéma expliquant les différents modes de fonctionnement de la source.

4.1.4. Isolation thermique.

Afin de limiter la puissance à utiliser pour amener les tubes à haute température, une isolation thermique est nécessaire entre les tubes et la boîte ECS refroidie. Cette isolation est constituée de deux demi-coquilles, enveloppant les tubes, en mousse de graphite isolante : le GRI [201]. C'est ce même type d'isolation qui est utilisé autour du four V5 [196,197].

4.1.5. Canon à ions.

Le canon à ions utilisé lors des tests sur le dispositif SISTHE et décrit dans la partie 3.2.1 a été adapté pour pouvoir effectuer des mesures de temps de réponse et d'efficacité sur la SIS de SPIRAL 2. Il sera placé à l'arrière de la cible et permettra d'envoyer des impulsions d'ions alcalins dans la cible ou directement dans le tube de transfert.



Fig. 80 _ Photo du canon à ions adapté pour effectuer les tests sur la SIS de SPIRAL 2.

4.2. Test du prototype.

La source à ionisation de surface a été mise en place dans la boîte de test des ECS de SPIRAL 2 sur un banc dédié. La première étape a consisté à effectuer une calibration thermique du système « SIS + four V5 ». Le schéma (Fig. 81) présente de manière simplifiée les branchements électriques permettant d'alimenter le four et les tubes.

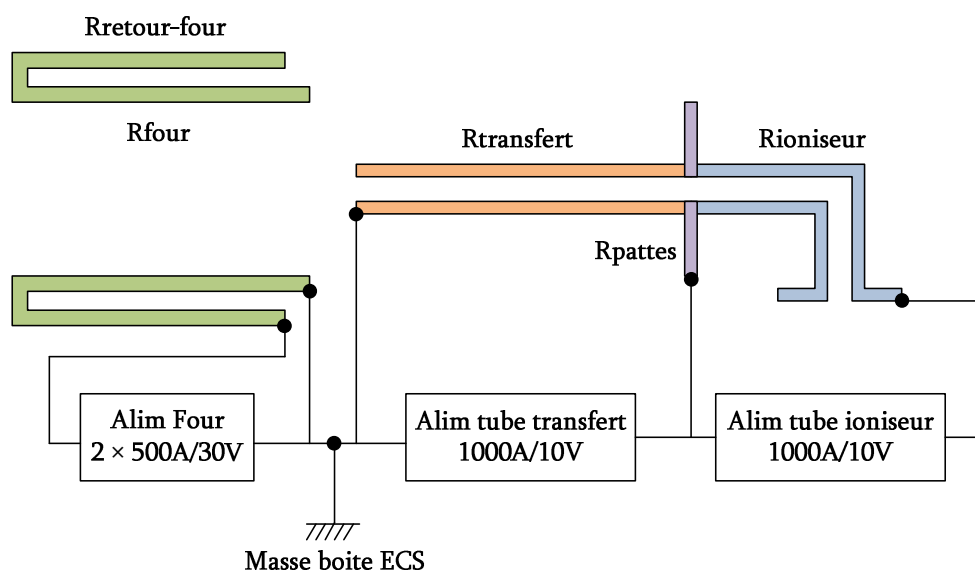


Fig. 81 _ Schéma électrique simplifié du montage permettant l'alimentation du four et des tubes. Les résistances électriques des différents éléments chauffant du système y sont représentées

4.2.1. Vide et dégazage.

La pression dans la chambre a oscillé entre 2×10^{-6} mbar (hors chauffage) et $2,5 \times 10^{-4}$ mbar en cours de dégazage. Les incréments de puissance sur les éléments chauffant ont été limités pour que la pression de 3×10^{-4} mbar ne soit pas dépassée (seuil de pression conditionnant le fonctionnement des alimentations de courant).

Le temps de récupération du niveau de pression après un incrément de puissance était de l'ordre de la demi-heure (entre le changement de consigne de puissance et l'instant de redescente de la pression).

Le dégazage du système permettant d'atteindre les températures présentées dans la partie ci-dessous a duré 10 jours.

4.2.2. Calibration thermique.

La calibration thermique est menée à l'aide d'un pyromètre optique et de thermocouples. Le schéma (Fig. 82) situe les points de mesure de température dans le four, le tube de transfert et le tube ioniseur. Cette figure peut aussi être trouvée en dernière page et détachée du manuscrit pour limiter les allers-retours dans la lecture. Pour pouvoir viser avec le pyromètre à l'intérieur du tube de transfert, la cible et son conteneur ont été retirés et deux hublots ont été fixés sur le dispositif. Le premier, placé sur la chambre du dipôle d'analyse, dans l'axe BE, permet de viser l'intérieur du tube ioniseur. Le second est fixé sur la bride située à l'arrière du four et permet de viser la résistance du four et l'intérieur du tube de transfert. Un troisième hublot est placé à l'opposé, il permet d'observer visuellement l'intérieur de la boîte de tests. Deux thermocouples (fils de 0,2 mm

W5%Re et W26%Re) ont été ajoutés pour connaître la température des enveloppes en GRI. Le premier est placé à environ 5 mm sous la surface externe de l'enveloppe du tube de transfert (point 11), et le second dans l'enveloppe GRI du four, à environ 5 mm de l'enveloppe refroidie en cuivre (point 12).

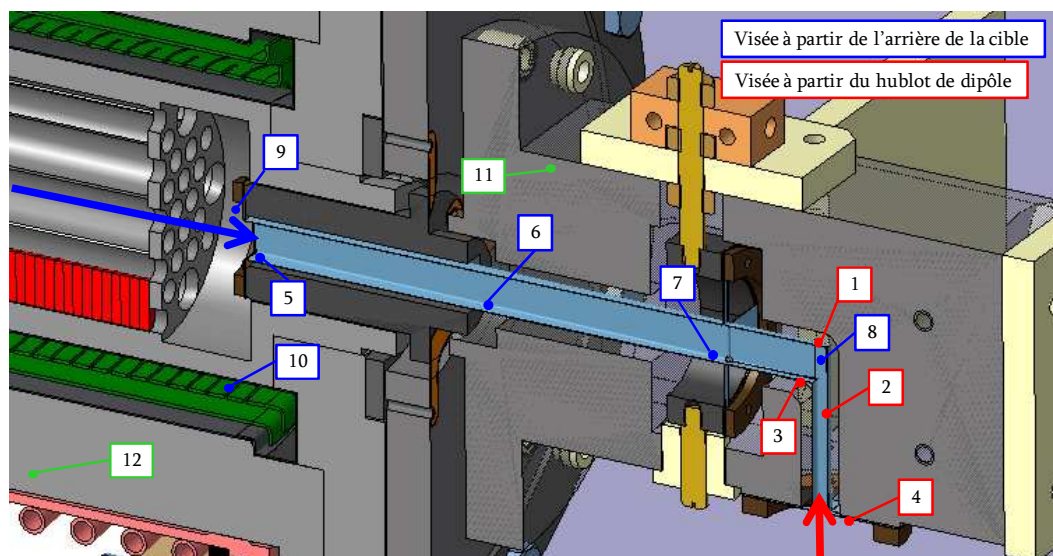


Fig. 82 _ Schéma de positionnement des différents points de mesure de température. En rouge sont représentés les points visés au pyromètre au travers du dipôle d'analyse, en bleu les points visés au pyromètre à l'arrière de la cible et en vert les thermocouples.

Les deux photos suivantes (Fig. 83 et Fig. 84) donnent un aperçu du système en cours de fonctionnement. Elles ont été prises au travers des hublots permettant les mesures de température.



Fig. 83 _ Vue au travers du hublot placé à l'arrière du four. Il est possible de distinguer l'entrée du tube de transfert (carré lumineux au centre), les 8 vis de connexion du tube et une partie du circuit four (stries à droite de l'image). La vue est limitée à un cercle central et une fente réalisés dans une feuille de Papyex servant d'écran de protection au hublot.

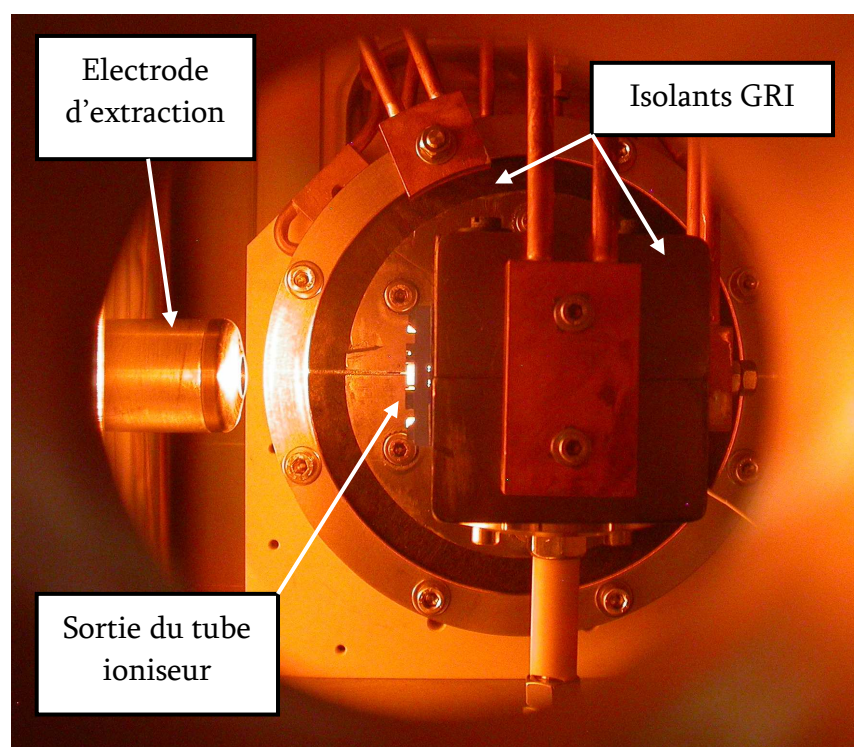


Fig. 84 _ Vue au travers du hublot placé à l'opposé du four.

Le test a commencé par une montée progressive de la température du four. Pour une puissance de 1300 W, la température du four était de 1208°C. Cette température devait être maintenue pendant une première série de mesures de températures du tube de transfert et du tube ioniseur dans une plage accessible au pyromètre (800°C à > 2000°C). L'intérêt de cette démarche était de prendre en compte l'influence de la température du four sur la température du tube de transfert. La température du four devait ensuite être montée progressivement jusqu'à 1500°C (limite d'épreuve du four).

Deux problèmes sont intervenus lors des mesures de température :

Pb1 : Deux jours après le début des mesures, un court circuit entre pôles est apparu entre l'alimentation et le four. Il n'était plus possible de chauffer le four.

Pb2 : quelques heures plus tard, pour une puissance de 630 W appliquée sur le ioniseur et de 1022 W sur le tube de transfert, le contact du point commun entre alimentations et tubes a rompu ($R_{\text{pattes}} = \infty$, voir Fig. 81). Après cet incident, les alimentations du tube de transfert et du tube ioniseur étaient en série et les couples courant tension observés au préalable ont été modifiés. La température du tube ioniseur indiquait que la couronne en graphite du point de jonction des tubes touchait la couverture en GRI, dérivant une partie du courant. Il demeurerait donc possible d'alimenter le tube de transfert comme auparavant, mais pour le ioniseur, la relation entre la température et la puissance était faussée.

4.2.2.1. Température du tube ioniseur en fonction de sa puissance.

La température du tube ioniseur en fonction de la puissance qui lui est imposée a été mesurée jusqu'à l'apparition du Pb2. Après, il n'était plus possible de savoir quelle était la part de la puissance totale dissipée dans le tube ioniseur et dans le tube de transfert.

Le graphique (Fig. 85) montre que la température à l'intérieur du tube ioniseur (T1, T2, T3 et T8 voir sur Fig. 82) a atteint environ 1900°C pour une puissance de 630 W. Les écarts de température entre ces points sont inférieurs à 200°C. Le point de mesure T4 correspond à la température des pattes de connexion en sortie de tube.

Par extrapolation $\propto T^4$ de cette courbe, la puissance requise pour atteindre 2200°C est estimée inférieure à 1200 W.

Les puissances consommées sont nettement inférieures à celles estimées à partir des mesures sur SISTHE. Les coquilles en GRI placées autour des tubes assurent donc un bon isolement thermique.

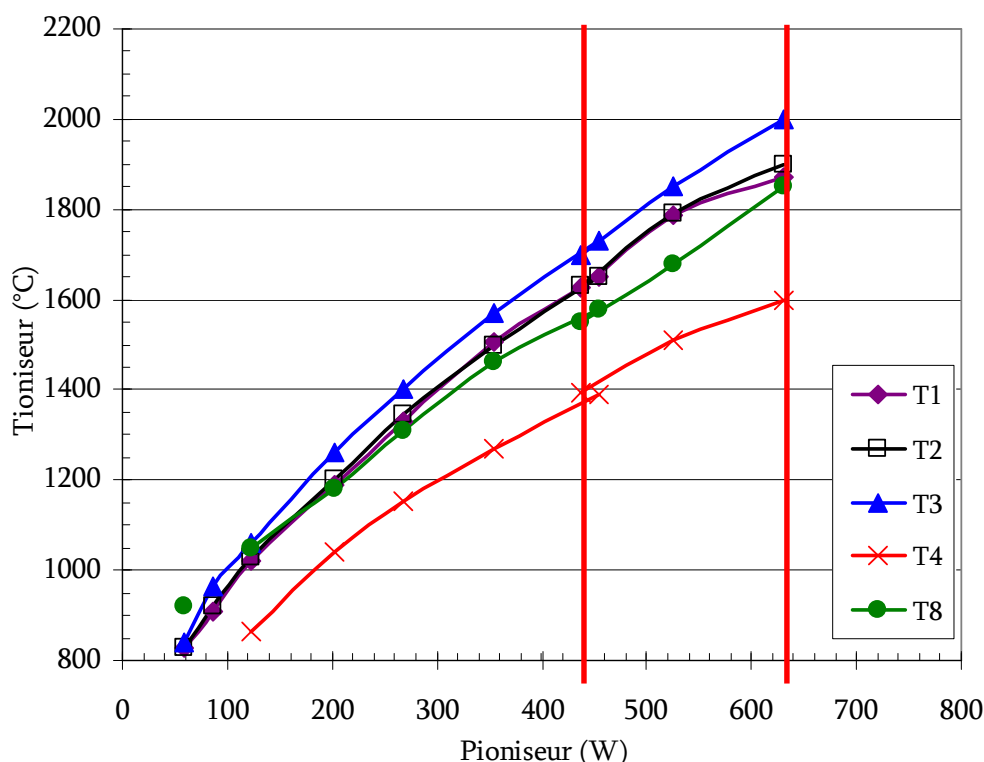


Fig. 85 _ Température du tube ioniseur en fonction de sa puissance. Les traits verticaux rouges indiquent l'apparition des Pb 1 (trait à gauche) et Pb2.

4.2.2.2. Température du tube transfert en fonction de sa puissance.

La température atteinte à l'intérieur du tube de transfert (T6 et T7 voir sur Fig. 82) est de 1900°C (Fig. 86). Le point de mesure T5 correspond à l'entrée du tube de transfert. Cette température, plus faible d'environ 100°C que dans le reste du tube de transfert, devrait être relevée par le rayonnement du four sur le tube de transfert lorsque le four sera porté à 2000°C. Le dysfonctionnement du four n'a pas engendré de rupture importante dans l'évolution de la température du tube de transfert en fonction de sa puissance. Malgré cet écart de 100°C en entrée de tube, la température est déjà très homogène : aucun point froid susceptible de conduire à une rétention d'alcalins n'est observé. Le point T9 chute suite à l'arrêt du four car ce point est situé sur une pièce en carbone, dans le four.

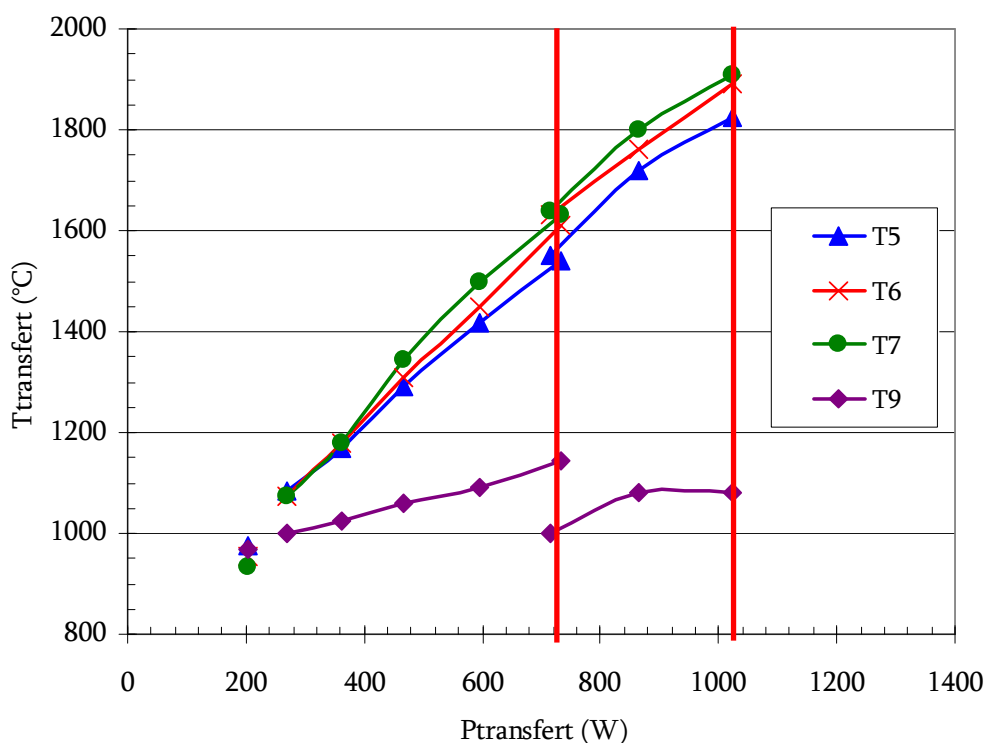


Fig. 86 _ Température du tube de transfert en fonction de sa puissance. Les traits verticaux rouges indiquent l'intervention des Pb 1 (trait à gauche) et Pb2.

4.2.2.3. Températures maximum.

Après la perte de contact entre les alimentations et le point de raccordement entre les tubes (Pb2), la puissance totale a été augmentée pour observer s'il était possible d'atteindre une température supérieure à 2000°C. La dérivation du courant, qui aurait dû traverser le tube ioniseur, a diminuée la puissance qui lui

était fournie et donc sa température. Cependant, il a été possible d'atteindre 2000°C en T8 (Fig. 87).

Le courant délivré par les deux alimentations traversant intégralement le tube de transfert, celui-ci a pu être monté en température jusqu'à 2100°C en T6 (milieu du tube de transfert) et 2200°C en T7 (point de jonction des tubes) (Fig. 87).

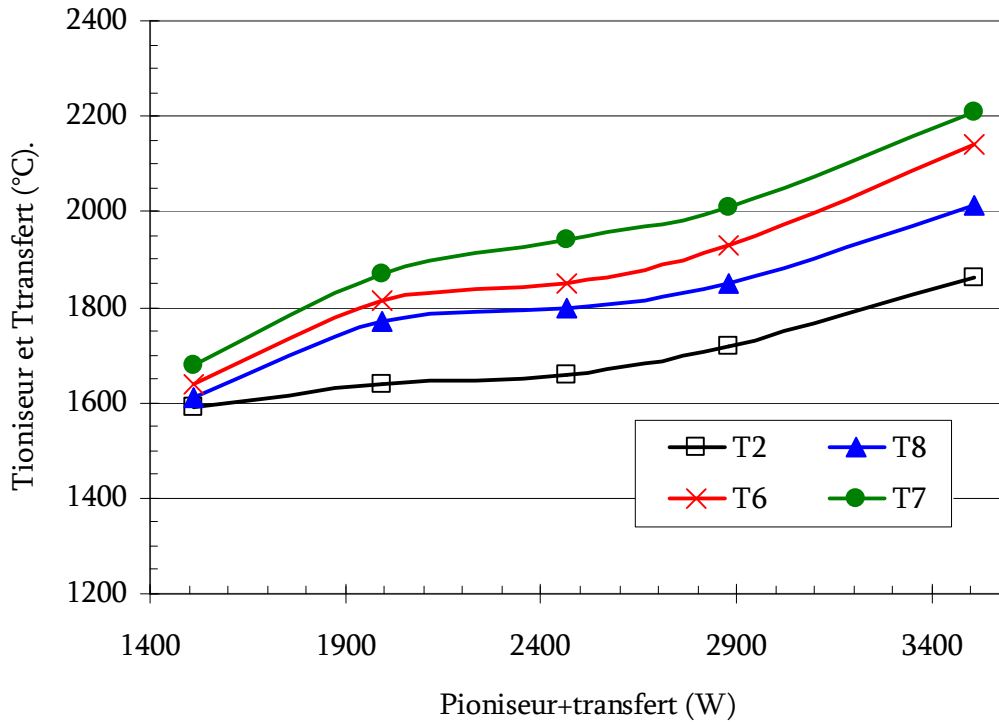


Fig. 87 _ Evolution de la température du tube ioniseur (T2 et T8) et de la température du tube de transfert (T6 et T7) en fonction de la puissance totale, après Pb2.

4.2.2.4. Puissance en fonction de la tension des tubes de transfert et ioniseur.

Le tube ioniseur a été conçu pour qu'à la température de fonctionnement recherchée (2000°C) le champ électrique soit proche de 1 V.cm⁻¹. Le graphique (Fig. 88) montre qu'à 900 W (puissance requise pour que la température soit supérieure à 2000°C) la tension aux bornes de l'alimentation serait d'environ 7 V. Cette tension est appliquée sur le tube ioniseur ($R = 17,4 \text{ m}\Omega$) mais aussi sur les trois derniers centimètres du tube de transfert ($R = 12 \text{ m}\Omega$) (voir la partie 4.1.3). En prenant en compte les pertes dans les câbles, la tension appliquée au tube ioniseur seule serait de 3,8 V. Sa longueur étant de 4,4 cm, le champ électrique serait de l'ordre de 0,85 V.cm⁻¹.

Pour atteindre une valeur de 1 V.cm^{-1} , la puissance devrait être de l'ordre de 1200 W (par extrapolation à partir de la Fig. 88). Cette puissance conduirait à une température de l'ordre de 2200°C . Cette température reste dans le domaine accessible avec du rhénium ($T_{\text{fusion}} = 3185^{\circ}\text{C}$). Une montée de la température du tube ioniseur sera donc tentée au cours du prochain test jusqu'à une puissance de 1200 W.

La tension maximum aux bornes du tube de transfert a été de 7,86 V. Sa longueur étant de 15 cm, le champ électrique maximum était légèrement supérieur à $0,5\text{ V.cm}^{-1}$. De la même façon que pour le tube ioniseur, il est envisagé d'augmenter ce champ électrique par une augmentation de la puissance jusqu'à 3 kW.

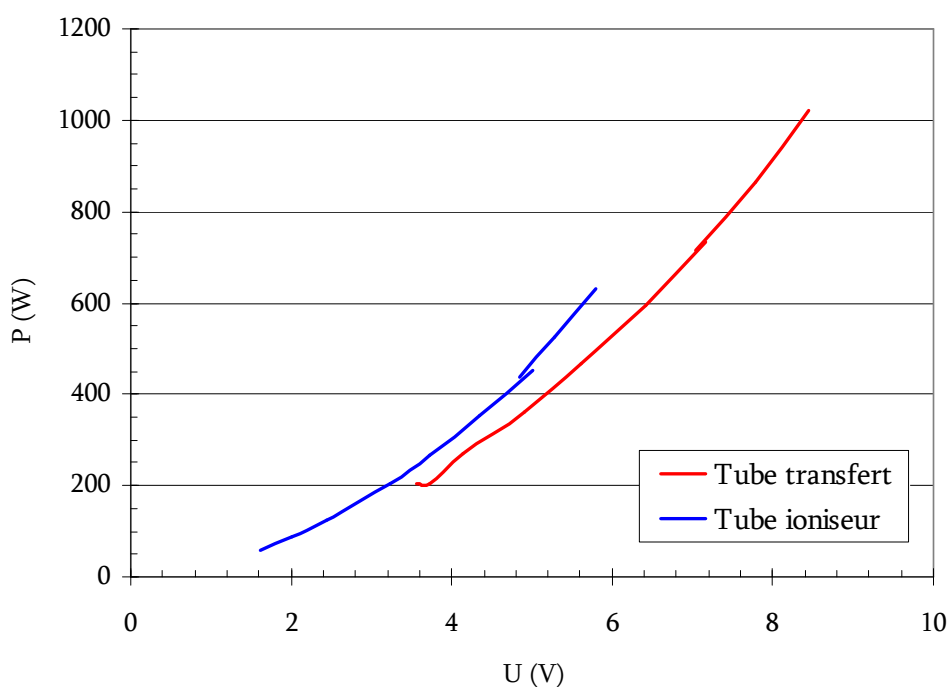


Fig. 88 _ Puissance dans le tube de transfert et dans le tube ioniseur en fonction de la tension délivrée par l'alimentation de courant. Cette tension est mesurée en sortie des alimentations.

4.2.2.5. Températures de l'environnement.

La température de l'enveloppe en GRI a été mesurée en deux points (11 et 12 sur Fig. 82) à l'aide de thermocouples. Les résultats sont présentés dans le tableau 11.

	T11 (enveloppe tube transfert)	T12 (enveloppe four)
Four 1200°C/ Ioniseur 1700°C/ Tube de transfert 1600°C	540°C	353°C
Four HS/ Ioniseur 1900°C/ Tube de transfert 1900°C	614°C	252°C
Four HS/ Tube de transfert 2200°C	832°C	331°C

tableau 11 _ Mesure de la température des enveloppes isolantes en GRI.

La proximité de l'enveloppe refroidie en cuivre contribue à limiter la montée en température du GRI enveloppant le four. La température élevée (832°C) de l'enveloppe en GRI du tube de transfert, lors de la dernière mesure, indique qu'il faudrait ajouter un refroidissement supplémentaire dans cette zone pour limiter la puissance rayonnée dans l'enceinte contenant l'ECS.

Dans les conditions de la dernière ligne du tableau, la température de la surface supérieure de la boîte de test (surface non refroidie) atteignait 50°C. Cette température à l'extérieur de la boîte laisse supposer que les joints d'étanchéité sont exposés à une température plus élevée. Un refroidissement des plaques supérieures de la boîte test devrait être envisagé.

Les transitions de courant situées sur la plaque de connexion étaient à une température inférieure à 40°C.

4.2.3. Résultats complémentaires.

Les observations suivantes ont été faites lors du démontage de l'ECS-SIS, après qu'il ait été sorti de la boîte de test.

- Le point de jonction entre tube ioniseur et tube de transfert est désolidarisé de la vis qui le supportait, ce qui correspond au diagnostic de la fusion du contact d'amenée de courant entre tube de transfert et tube ioniseur ($R_{\text{pattes}} = \infty$). La matière de cette vis n'était pas conforme à la matière spécifiée sur le plan de fabrication (Molybdène), la vis a fondu. Sous le poids de la bague de liaison en carbone, le point de raccordement des tubes s'est affaissé dans l'enveloppe en GRI jusqu'à venir en contact avec celle-ci. Le courant traversant le tube de transfert s'écoulait ensuite en partie dans l'enveloppe en GRI et en partie dans le tube ioniseur, tel que diagnostiqué au cours des tests.

- Le tube ioniseur est légèrement détérioré à proximité de la vis fondue. Les pattes d'amenée de courant, à proximité de la vis, ont aussi fondues. Le métal de cette vis semble avoir réagi avec le rhénium pour conduire à une température de fusion de l'ensemble inférieure à celle du rhénium.

- En apparence, il n'y a pas de dépôt de carbone à l'intérieur de la chambre de la boîte alors que la pression dans la chambre est montée à une valeur proche de

3.10^{-4} mbar à chaque montée en température du four (pendant deux jours), du tube ioniseur et du tube de transfert. Les tubes en rhénium ne présentent aucune trace de carburation.

- Aucune déformation notable du tube ioniseur ou du tube de transfert n'a été constatée. L'alignement est identique à celui des pièces neuves.

4.3. Conclusions sur la conception de la SIS du projet SPIRAL 2.

Un premier prototype de source à ionisation de surface pour SPIRAL 2 a été conçu en s'appuyant sur les résultats des tests effectués sur SISTHE. Il a été mis en place sur le banc dédié aux tests des ECS de SPIRAL 2 pour effectuer sa calibration thermique. Durant les tests, un problème a été rencontré suite à la non-conformité du matériau d'une pièce. Malgré ce problème, des résultats intéressants ont été obtenus :

- Une température de 2000°C a été atteinte dans le tube de transfert et le tube ioniseur.
- L'homogénéité en température dans ces tubes est satisfaisante (dans une plage de 200°C) et sera encore réduite lorsque le four sera en fonctionnement.
- Le couplage entre la température four et celle du tube de transfert est faible et permet d'envisager une certaine indépendance de réglage des deux objets.
- La température n'a pas entraîné de déformation des tubes en rhénium, même après avoir subi la contrainte exercée par le poids de la pièce de jonction en carbone lors de la fusion des vis.
- Le rhénium ne présente pas de traces de carburation.
- Le champ électrique visé de 1V.cm^{-1} n'a pas été atteint mais devrait pouvoir l'être en augmentant la puissance imposée sur chaque tube. Cela devrait porter la température du tube ioniseur à 2200°C .
- L'isolation thermique assurée par les enveloppes en GRI semble efficace.

Le principe du tube en rhénium, réalisé à partir de fine feuilles pliées puis soudées, a donc donné satisfaction. Il sera remis en application dans la seconde version de la SIS.

5. Conclusion.

Le travail effectué au cours de cette thèse sur l'ionisation de surface constitue une première étape vers la production d'éléments alcalins et alcalino-terreux pour le projet SPIRAL 2.

Comme toute étude méthodique, elle a débuté par une réflexion de fond sur l'ionisation de surface. La théorie sous jacente à ce type de sources ainsi que ses différents modes de fonctionnement ont été appréhendés. Nous nous sommes informés sur les nouvelles installations de ce type de source et les dernières innovations dans le domaine.

Néanmoins, les technologies utilisées ne sont pas directement transposables au projet SPIRAL 2 qui présente des contraintes de fonctionnement bien spécifiques. Pour compléter ces informations, une série d'expériences a été menée sur un système versatile permettant d'effectuer de nombreux tests : SISTHE. Une méthode originale et présentant une grande flexibilité d'utilisation a été développée et mise en place pour mesurer des efficacités et des temps de réponses sur ce système. Cette méthode est généralisable à toutes les sources d'ionisation de surface. De manière plus précise, ces tests ont permis de mesurer le temps de réponse du tube ioniseur de cette source. Les temps très courts obtenus (< 100 ms) indiquent que ce processus sera peu pénalisant, même avec des tubes de dimensions plus importantes. Le temps de résidence des alcalins sur le graphite en fonction de sa température a été estimé. Cette donnée est essentielle et permettra de prédire la vitesse d'effusion des alcalins produits dans la cible d'UCx de SPIRAL 2. L'influence de nombreux paramètres sur l'efficacité d'ionisation du système a été mesurée. Parmi ceux-ci, on peut citer : le matériau du tube ioniseur, sa température, son champ électrique, la nature et la quantité des alcalins injectés. Une diminution de l'efficacité avec le courant d'alcalins injecté a été observée. En outre, les résultats soulignent l'importance du champ électrique dans le tube. Enfin, l'utilisation d'un tube en rhénium semble être avantageuse par rapport à un tube en carbone.

L'ensemble de ces résultats a permis de guider la conception du premier prototype de SIS pour SPIRAL 2. Une fois réalisé, ce prototype a été couplé à la dernière version du four (four V5, destiné à chauffer la cible d'UCx) pour effectuer une calibration thermique. Un problème mécanique est survenu au cours des tests, néanmoins les résultats obtenus sont positifs. Le principe du tube en rhénium, réalisé à partir de fines feuilles pliées puis soudées, a donné satisfaction.

Des nouveaux tests sont dès à présent envisagés. Ils ne pourront malheureusement pas être effectués dans le cadre de cette thèse. A court terme, il est prévu d'utiliser le même principe mais en supprimant le point de connexion

pour l'ionisation laser et en réduisant la longueur du tube de transfert. Une nouvelle calibration thermique sera effectuée à plus haute température, le but étant d'atteindre 2500 K et un champ électrique dans le tube ioniseur de 1V.cm^{-1} . Le canon à ions sera ensuite placé à l'arrière de la cible afin d'injecter des impulsions d'alcalins dans l'ECS. Cela permettra de mesurer le temps de réponse et l'efficacité de la SIS seule ou couplée à une cible de carbone. A plus long terme, un nouveau prototype devra être construit. Ce second prototype bénéficiera du retour d'expérience des tests présentés et de ceux à venir. Un nouveau cycle de mesures sera mené sur ce système et la réjection des alcalins pour l'ionisation laser pourra être testée.

Chapitre 3

Développement d'un ECS dédié aux faisceaux d'ions gaz nobles

1. Introduction.

MONOBOB (source à BOBbines pour ions-MONO-chargés) est une source ECR (*Electron Cyclotron Resonance*) qui a été conçue au GANIL. Sa finalité est l'ionisation des éléments gazeux issus des cibles de production de SPIRAL 2. Elle est donc soumise aux mêmes contraintes que la source à ionisation de surface (SIS) : sa durée de vie doit être d'au moins 3 mois, elle doit supporter le flux provenant du dégazage de la cible et elle doit résister au flux de neutrons présent à proximité de la cible. Les éléments à ioniser sont issus des réactions de fissions induites par un flux de neutrons dans une cible d'UCx, majoritairement les gaz nobles Kr et Xe. Mais, ils peuvent aussi provenir d'autres types de cibles. Le groupe de travail « autres faisceaux-autres cibles » étudie par exemple, la possibilité de produire un faisceau d' ^6He à l'aide d'une cible d'oxyde de béryllium (voir la partie 2 du 1^{er} chapitre). Le premier chapitre de cette thèse présente aussi l'étude de la production d' ^{14}O par implantation d'un faisceau d' ^3He sur une cible de carbone. La molécule volatile C^{14}O ainsi produite peut être directement injectée dans une telle source pour obtenir un faisceau d' $^{14}\text{O}^+$.

Cette source a été développée par étapes depuis mars 2002. Dans le cadre de cette thèse, la seconde version a été utilisée, couplée à une cible de carbone. Des mesures d'efficacité et de temps de réponse ont été réalisées sur cet ensemble. Ces mesures permettront d'estimer le temps de vol sans collage dans la cible de production et ainsi d'estimer l'impact du processus d'effusion sur la production d'isotopes radioactifs (voir le chapitre 4).

2. Une source ECR pour la production de faisceaux radioactifs.

2.1. Principe de fonctionnement d'une source ECR.

Le principe de fonctionnement des sources ECR a été largement décrit dans la littérature [202,203]. Il repose d'une part sur l'accélération d'électrons par résonance cyclotronique électronique à haute fréquence (quelques GHz) et sur le confinement de ces électrons dans un volume magnétique. Les ions sont créés par collisions successives entre ces électrons et les atomes ou ions. Ce mélange d'ions, d'atomes et d'électrons constitue un plasma qui est confiné à l'aide du champ magnétique. L'amplitude du champ magnétique conditionne la fréquence de l'onde accélératrice injectée dans le plasma et par conséquent l'énergie des électrons qui peut être comprise entre quelques eV et plusieurs centaines de keV. Les électrons de couches atomiques profondes peuvent ainsi être éjectés pour conduire à la production d'ions d'états de charge élevés. La source MONOBOB [21] est dédiée à la production d'ions mono-chargés. Sa fréquence de résonance (2,45 GHz) et son champ magnétique sont moins élevés que pour les sources d'ions multichargés.

2.2. Motivations pour le développement de la source MONOBOB.

Les sources ECR sont largement utilisées pour la production de faisceaux d'ions stables grâce aux importants courants et aux hauts états de charge qu'elles délivrent. Leur utilisation pour produire des faisceaux d'ions radioactifs est plus marginale car ce type de source est peu adapté aux contraintes radiologiques rencontrées à proximité de la cible de production. Pour produire des ions stables, la structure magnétique de ces sources est généralement réalisée à partir d'aimants permanents et de bobines magnétiques. Les aimants permanents sont sensibles à l'irradiation par un flux de neutrons, et plus particulièrement si leurs champs sont opposés [204]. La résine utilisée pour maintenir, tout en isolant électriquement, les bobines magnétiques est fortement endommagée par des doses d'irradiation de neutrons supérieures à 10^7 Gy [205]. Dans la casemate de production de SPIRAL 2, cette dose sera atteinte après seulement deux jours de fonctionnement.

Sur le projet SPIRAL 2 les faisceaux radioactifs seront post accélérés à l'aide du cyclotron CIME. Pour cela il est nécessaire de disposer de faisceaux d'ions multi-chargés. L'état de charge des ions sera élevé par la méthode « $1^+/n^+$ » [25-27] : le faisceau produit par une source d'ions 1^+ située dans la casemate sera accéléré, passera dans un séparateur de masse puis sera injecté dans l'élévateur de charge. Cet élévateur de charge peut être une source EBIS (Electron Beam Ion Source) [206-208] ou une source ECR. Il sera placé à l'extérieur de la casemate de

production et ne sera donc pas sujet aux dommages par irradiation. La source d'ions mono-chargés sera placée directement dans la casemate de production au plus proche de la cible. Elle devra être résistante à l'irradiation des neutrons. Dans une source ECR dédiée à la production d'ions mono-chargés, les contraintes sur les performances du champ magnétique utilisé sont relâchées par rapport à une source pour les multichargés. Dans ces conditions, une structure magnétique simplifiée respectant les contraintes de nucléarisation peut être envisagée.

La source ECR MONOBOB a initialement été conçue dans le but de disposer d'une source d'ions mono-chargés qui puisse fonctionner dans un environnement hostile pendant une période supérieure à trois mois tout en présentant de bonnes efficacités d'ionisation pour les isotopes de gaz issus de la fission de l'uranium.

2.3. Description de MONOBOB.

Pour la production d'éléments radioactifs, l'efficacité d'une source dépend de sa capacité à ioniser un maximum d'atomes pendant un temps le plus court possible devant leur période de décroissance. Par conséquent, les zones où les atomes peuvent effuser librement sans être ionisés doivent être limitées. Le volume de la chambre source a donc été limité à son minimum (750 cm^3) en épousant la forme calculée du volume occupé par le plasma dans la source (voir Fig. 89).

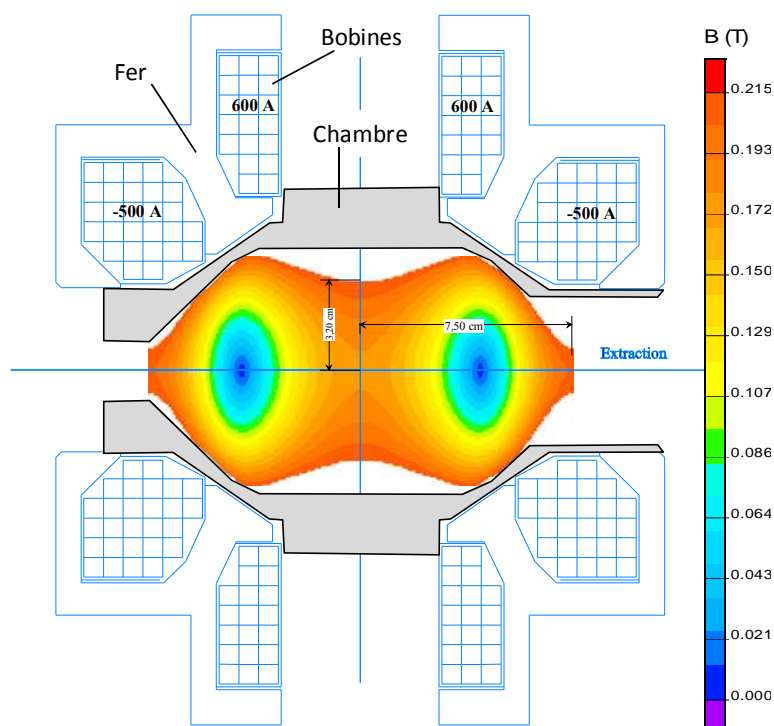


Fig. 89 _ Vue en coupe de la source MONOBOB version II avec la représentation des lignes d'iso-module et de la chambre optimisée.

La structure magnétique conçue pour MONOBOB est proche de celle de la source MONO1000 [209]. Au lieu des deux anneaux d'aimants permanents utilisés dans cette source, le champ est créé à l'aide de quatre bobines, agencées par paires symétriques et maintenues par une structure ferromagnétique. La dernière surface équipotentielle fermée présente un champ proche de 0,25 T, selon le courant circulant dans les bobines. Le rapport miroir entre le champ magnétique maximal d'une surface équipotentielle fermée et le champ résonant (0,087 T dans le cas d'une fréquence de fonctionnement de 2,45 GHz) est de 2,28. La carte de champ magnétique a été mesurée pour un courant de 1000 A dans les petites bobines (A et D voir Fig. 90) et 900 A dans les grandes bobines (B et C).

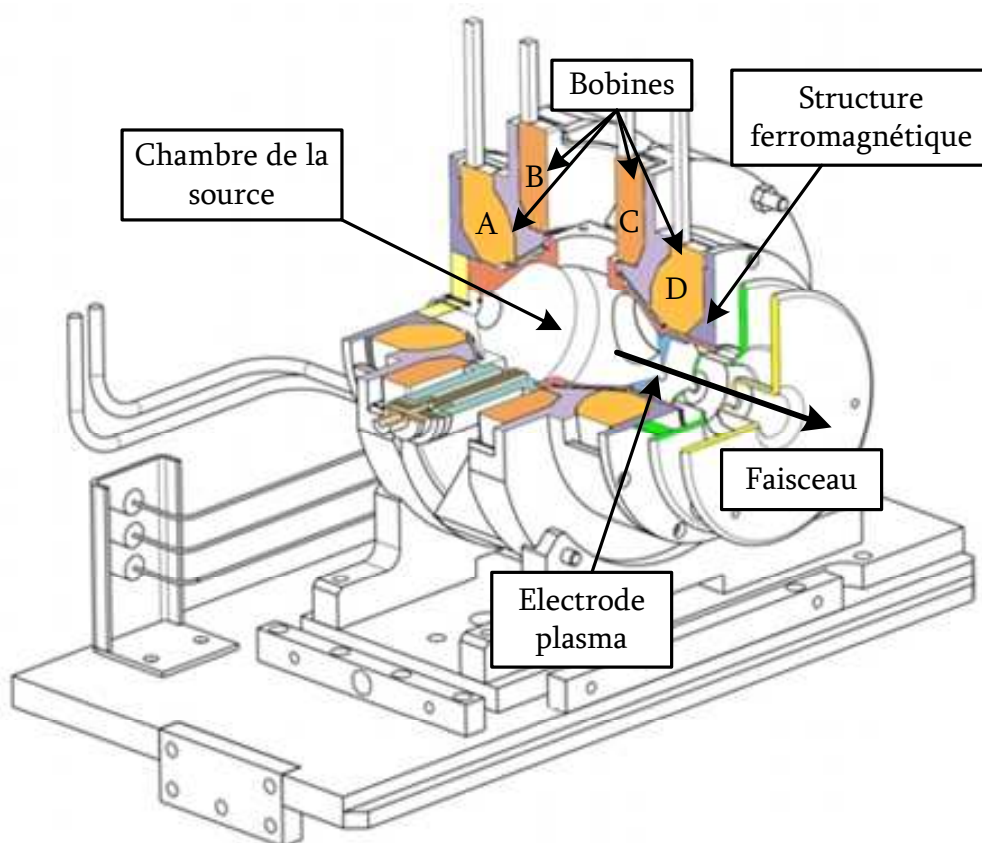


Fig. 90 _ Vue en coupe de la source MONOBOB.

Les bobines, leurs structures et de façon générale le corps de source ne sont constitués que de matériaux radio-résistants, métaux et minéraux à savoir cuivre, aciers et fibre de verre. L'étanchéité du volume de la chambre est réalisée par simple contact des pièces métalliques entre elles. Une étanchéité au vide n'est pas nécessaire puisque l'ECS (Ensemble Cible-Source) sera placé dans le module de production lui-même sous vide.

Différents types d'injection de l'onde accélératrice à 2,45 GHz ont été testés. La solution constituant à utiliser une antenne coaxiale mobile a été adoptée.

2.4. Bref historique.

La source MONOBOB a connue différentes versions et conditions de tests. Ce paragraphe en présente succinctement l'historique (C1, C2, C3 et C4).

- C1. La première version de MONOBOB a été conçue pour démontrer la possibilité de créer à l'aide de bobines une source équivalente à la source MONO1000 [209] à aimants permanents. Dans cette version, les contraintes de radorésistance de la source n'ont pas été considérées. De plus, le volume de la chambre était important et présentait des zones sans plasma. La chambre de la source était étanche au vide et les tests ont été effectués avec la pression atmosphérique à l'extérieur de la source. Enfin, sa conception impliquait de la chaudronnerie, technique peu adaptée à la fabrication en série de pièces identiques.

Les résultats encourageants obtenus ont poussé à la conception d'une seconde version. La structure magnétique de la source a été optimisée autour du volume de la chambre lui-même réduit pour épouser le volume magnétique au plus près. Les matériaux utilisés dans cette version la rendent résistante aux rayonnements.

- C2. Une première série de tests a été effectuée avec une chambre source étanche et avec la pression atmosphérique à l'extérieur de la source. L'optimisation de la structure magnétique a entraîné une augmentation de la résistance des bobines. Lors des tests, la tension maximale pouvant être délivrée par les alimentations (10 V) a été atteinte, ce qui a limité le courant dans les bobines.

- C3. Par la suite, les joints d'étanchéité de la source ont été retirés et elle a été placée entièrement sous vide dans la boîte de test des ECS de SPIRAL 2. L'étanchéité de la chambre source est simplement obtenue par l'ajustement des pièces. Au niveau du passage de l'antenne HF, une petite ouverture subsiste. Une petite partie des éléments présents dans la source peut s'échapper par cette ouverture vers le volume de la boîte, entraînant une baisse d'efficacité de la source. Du fait de la nouvelle configuration du banc de test, la distance entre les alimentations de courant et les bobines a été augmentée. Les pertes dans les câbles alimentant les bobines ont aussi augmenté, ce qui a introduit une limitation supplémentaire du courant des bobines.

- C4. Préalablement à la dernière série de mesures, le banc de test a été modifié afin de mieux répondre aux besoins de la boîte de tests et aussi de valider des techniques qu'il est envisagé de transposer sur l'installation de SPIRAL 2. Ainsi, de nouveaux câbles d'alimentation en courant ont été installés. Ils sont constitués d'un tuyau refermant une tresse métallique refroidie par circulation

d'eau. Le but est de disposer de câbles de section plus faible pour faciliter la connexion de l'ECS [210]. Mais la section du câble a été sous dimensionnée et entraîne une nouvelle limitation en courant par limitation de la tension d'alimentation.

Afin de s'affranchir de ces restrictions, une nouvelle alimentation de courant sera installée ultérieurement et les sections de câbles modifiées.

3. Caractérisation de l'ECS.

Les résultats présentés ont été obtenus lors d'une campagne de mesures effectuée sur le banc dédié aux tests des ECS de SPIRAL 2 entre le mois d'octobre 2009 et juin 2010. La source MONOBOB a été couplée au four V4 (four développé par le groupe d'Orsay [211-213]) contenant une cible de carbone. L'ensemble ainsi formé a été disposé dans l'enceinte de tests des ECS de SPIRAL 2.

3.1. Principe des mesures d'efficacité.

La problématique de la mesure d'efficacité a déjà été traitée pour des éléments condensables dans le cas d'une source à ionisation de surface (voir les parties 3.1.2 et 3.1.3 du 2nd chapitre). C'est désormais la mesure d'efficacité dans une source ECR pour des gaz qui fait l'objet de cette discussion.

La méthode la plus couramment utilisée consiste à injecter dans la source le gaz à ioniser au travers d'une fuite calibrée. Le flux délivré dépend de la pression du gaz en amont de la fuite calibrée et de sa température. Moyennant quelques précautions d'utilisation, elles permettent de connaître le flux injecté à moins de 10% près. Le gaz est ionisé par la source, en émerge, est accéléré puis trié en masse avant d'être comptabilisé dans une coupelle de Faraday. Le rapport du flux reçu par la coupelle de Faraday sur le flux injecté est égal au produit de l'efficacité d'ionisation de la source par l'efficacité de transport de la ligne. Pour pouvoir accéder à l'efficacité d'ionisation seule, il faut pouvoir estimer correctement l'efficacité de transport de la ligne. Pour cela, le courant total débité par la source est mesuré via le courant débité par l'alimentation qui la polarise. Le spectromètre de masse permet d'effectuer un spectre du courant collecté par la coupelle de Faraday en fonction de la masse. La somme des courants de chaque pic du spectre divisée par le courant total débité par la source donne l'efficacité de transport de la ligne. Cependant, le transport dans la ligne n'est pas identique pour les différents ions débités par la source. En effet, il dépend de la masse et de la charge de l'élément transporté. Les pics les plus importants du spectre correspondant au gaz support de la source, la mesure réalisée donne une efficacité de transport proche de celle du gaz support. Pour un élément dont la masse est éloignée de celle du gaz support, l'estimation ainsi réalisée de l'efficacité de transport peut

être faussée. La mesure du courant total débité par la source d'ions peut être aussi une source d'erreur. Ce courant est mesuré via le courant débité par l'alimentation qui la polarise. Il se trouve que lorsque la source est éteinte, un courant continue de s'écouler au travers de cette alimentation. Il est dû à la résistivité de l'eau en provenance de la masse et qui refroidit les éléments portés à la haute tension. Pour connaître le courant total débité par la source, il faut donc soustraire au courant qui s'écoule dans l'alimentation haute tension, ce même courant lorsque la source ECR est éteinte. La mesure du courant total débité par la source d'ions peut aussi être faussée par le courant Penning dans la zone d'extraction et le courant électronique induit par l'éventuel dépôt d'ions sur l'électrode d'extraction.

Une seconde méthode présentée plus récemment [214] est basée sur la mesure du temps de réponse de la source. Une courte impulsion de gaz est injectée dans la source à l'aide d'une vanne rapide. Cette impulsion doit être courte devant les temps de réponse mesurés et la quantité de gaz injectée ne doit pas perturber le plasma de la source. Dans ces conditions, il a été démontré expérimentalement qu'il était possible de déterminer l'efficacité d'ionisation à partir d'une mesure du temps de réponse de la source. La mesure du temps de réponse et la connaissance de la géométrie de la chambre de la source d'ions suffisent à déterminer analytiquement son efficacité. Pour cela, on introduit la vitesse d'ionisation λ_{ion} qui est le rapport entre le nombre d'atomes à l'intérieur de la source et le flux d'ions en sortie, et la vitesse d'effusion λ_{eff} qui est le rapport entre le nombre d'atomes présents dans la source et le flux d'atomes effusant en dehors de la source. Si n_{a0} atomes sont injectés dans la source au temps $t = 0$, la variation temporelle du nombre n_i d'ions dans la source est donnée par l'équation suivante (44).

$$\frac{dn_i}{dt} = \lambda_{ion} \cdot n_{a0} \cdot e^{-(\lambda_{ion} + \lambda_{eff})t} \quad (44)$$

Si l'on néglige le temps de sortie des ions de la source (très court dans toutes les sources ECR pour les ions mono-chargés), l'efficacité d'ionisation ε_i de la source est donnée par la relation suivante :

$$\varepsilon_i = \frac{\lambda_{ion}}{\lambda_{ion} + \lambda_{eff}} \quad (45)$$

Un ajustement de la réponse de la source à l'impulsion permet de déterminer $\lambda_{ion} + \lambda_{eff}$. En considérant que le volume de la chambre de la source est grand

devant les orifices de sortie, et que les différentes parties du volume source sont reliées par des conductances très supérieures à la conductance de sortie, la forme de l'effusion des atomes hors de la source est proche d'une exponentielle. λ_{eff} peut être estimée par le rapport de la conductance des orifices d'extraction et du volume de la chambre de la source.

Ces deux méthodes ont été utilisées au cours des tests de MONOBOB. D'autres méthodes, permettant de mesurer l'efficacité d'ionisation d'une source ECR, existent [182]. Néanmoins, elles sont moins bien adaptées à notre dispositif que les deux méthodes présentées précédemment.

3.2. Description du dispositif expérimental.

La source MONOBOB est reliée, via un tube de transfert froid, à une cible de carbone reproduisant la géométrie de la cible d'UCx (il n'est pas possible d'utiliser d'UCx sur le banc de test du GANIL). Elle est constituée de 19 barillets, de 80 pastilles chacun, maintenus par un conteneur en carbone. Chaque pastille présente un diamètre de 1,5 cm et une épaisseur de 1 mm. Cet ensemble est placé dans la boîte de test des ECS de SPIRAL 2 (Fig. 91).

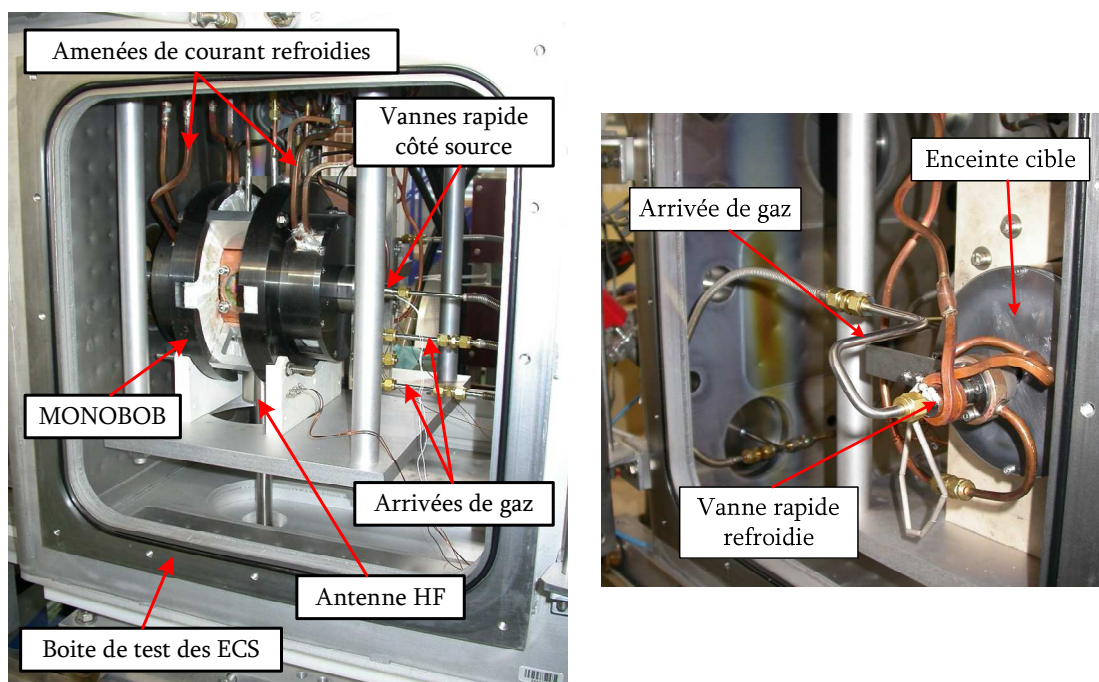


Fig. 91 _ Vue de l'intérieur de la boîte des tests des ECS côté source (photo de gauche) et côté cible (photo de droite).

Deux vannes rapides destinées aux mesures de temps de réponse ont été utilisées. La première est installée sur l'axe de la source, à l'opposé du trou de sortie des ions. La seconde vanne rapide est installée côté cible. Son corps et la bride sur laquelle elle est fixée sont refroidis par circulation d'eau. Le gaz est injecté dans la cible par un orifice de 2 mm de diamètre. Face à cet orifice, les 20 premières pastilles de carbone ont été percées en leur centre sur un diamètre d'environ 5 mm. Ceci permet de s'assurer qu'une partie de l'effusion des atomes sera effectuée entre les pastilles sans contourner la cible. Pour que le clapet en Téflon des vannes rapides ne soit pas endommagé par le plasma ou par le rayonnement de la cible, un axe de 6 mm de diamètre est placé sur l'axe de la vanne, face au clapet. Ces deux vannes sont alimentées par une bouteille contenant un mélange des gaz He, Ne, Ar, Kr et Xe. Cela permet d'effectuer les mesures de temps de réponse pour tous ces gaz dans les mêmes conditions de fonctionnement de la source. Pour minimiser la perturbation induite par l'injection des impulsions de gaz, l'ouverture des vannes est réglée de façon à ce que la fluctuation engendrée sur l'intensité totale débitée par la source soit faible. Le critère était qu'elle devait être inférieure aux fluctuations de la source sans injection d'impulsions (fluctuation de l'ordre de 1 à 2 μA à comparer à plusieurs centaines de μA de courant total débité). L'ouverture des vannes est commandée par un générateur d'impulsions. Il déclenche aussi l'oscilloscope servant à l'acquisition des courbes de réponse sur la coupelle de Faraday.

Une fuite calibrée destinée aux mesures d'efficacité permet d'injecter un flux constant et connu de gaz à l'arrière de la source, à l'opposé du trou de sortie des ions. Le schéma (Fig. 92) récapitule les différents éléments constitutifs de ce dispositif.

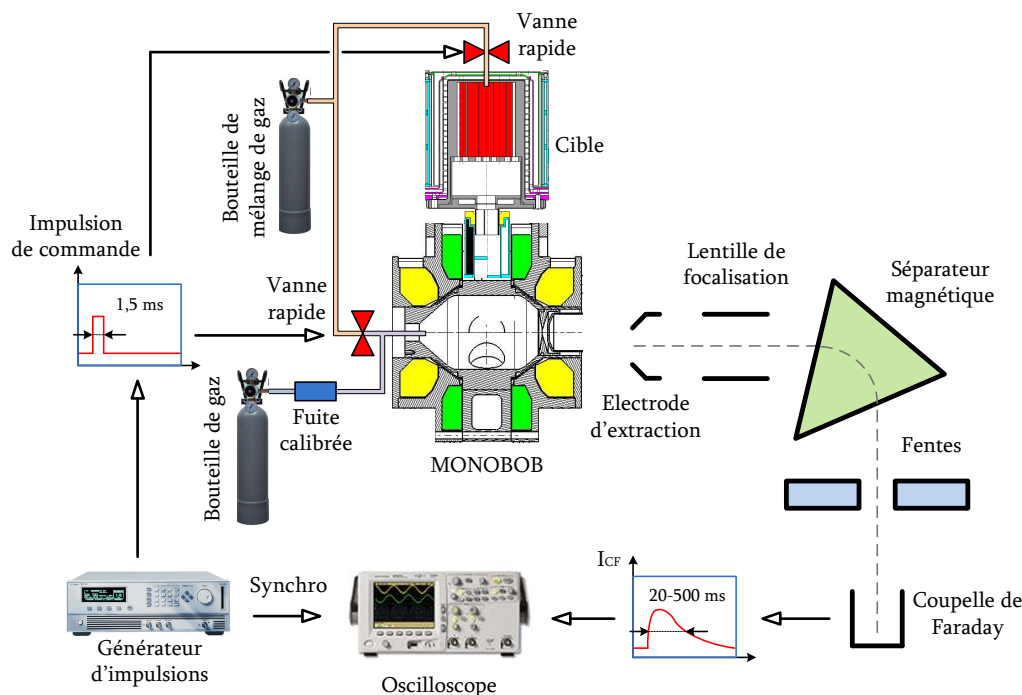


Fig. 92 _ Schéma de principe du système d'acquisition des mesures de temps de réponse et d'efficacité.

Durant tous les tests, l'ECS a été polarisé à 15 kV par rapport à la terre. L'azote était utilisé comme gaz support, son flux était régulé à l'aide d'une vanne motorisée. L'électrode plasma placée à 41 mm du centre de la source présente un orifice de 7 mm de diamètre. L'électrode d'extraction présente un diamètre intérieur de 37 mm et un orifice de 14 mm.

3.3. Mesures d'efficacité.

Une série de mesures d'efficacité d'ionisation de la source a été menée à l'aide de la fuite calibrée. Les gaz qui ont été étudiés sont les suivants : He, Ne, Ar, Kr et Xe. La démarche de la mesure a déjà été présentée (voir la partie 3.1). Les valeurs d'efficacités et les conditions dans lesquelles elles ont été obtenues sont regroupées dans le tableau 12.

Gaz	^4He	^{20}Ne	^{40}Ar	^{84}Kr	^{129}Xe
$I_{\text{Gr.Bob}}$ (A)	504	510	471	402	512
$I_{\text{Pt.Bob}}$ (A)	487	291	302	298	190
P_{HF} (W)	60	60	50	45	42
$\epsilon_{\text{ion } 1^+}$ (%)	7	35	52	55	67
$\epsilon_{\text{ion } 2^+}$ (%)	-	3	10	-	7,5

tableau 12 _ Efficacité d'ionisation de la source MONOBOB pour différents gaz nobles.

Comme cela a été expliqué, la mesure de l'efficacité d'ionisation avec une fuite calibrée nécessite de connaître l'efficacité de transport du faisceau dans la ligne. Au cours des tests, l'eau du circuit de refroidissement était mal déminéralisée, le courant total débité par la source était parfois faible (200 μ A) en comparaison du courant s'écoulant dans l'alimentation haute tension (5 mA). Ceci a rendu difficile la détermination du transport et donc de l'efficacité d'ionisation. L'incertitude sur la mesure de l'efficacité d'ionisation est estimée à 15%.

Les efficacités mesurées sont faibles en comparaison des résultats obtenus auparavant avec cette source [21] (dans l'article, les mesures ont été effectuées dans les conditions C1 décrites dans la partie 2.4). Ces tests ont été effectués dans des conditions où le courant dans les bobines de la source était limité (condition C3 décrite dans la partie 2.4). Par exemple, le courant sur la grande bobine était limité à 510 A, à comparer aux 1000 A utilisés lors des premier tests. Les écarts d'efficacité peuvent être expliqués par cette limitation. La figure 4 de l'article [21] présentant l'évolution de l'efficacité d'ionisation de l' ^{40}Ar avec le courant circulant dans les petites bobines démontre l'importance de cet effet.

Rappelons aussi que les tests ont été réalisés sans joints d'étanchéité dans la source. Au niveau du passage de l'antenne HF, une petite ouverture subsiste au travers de laquelle une partie des atomes peuvent s'échapper de la source. Les pertes sont estimées à 13%.

Nous avons aussi tenté d'estimer l'efficacité de la source à partir des temps de réponse à une impulsion de gaz injectée dans la source. La démarche suivie est décrite dans la partie 3.1. L'ajustement des mesures de relâchement par une fonction dont la décroissance est gouvernée par une seule exponentielle n'est pas satisfaisant. Un exemple est présenté ci-dessous (Fig. 93), il s'agit de la réponse à une impulsion d'argon (courbe bleue) et de son ajustement (courbe rouge). Cette différence est attribuée à la présence de la cible reliée au volume de la chambre source. Elle constitue un volume relié à celui de la chambre source par une conductance qui n'est pas négligeable devant celle de l'orifice de sortie. L'efficacité déterminée à partir de cet ajustement pour l'argon à température ambiante est supérieure à 60%. Simultanément, l'efficacité était suivie à l'aide d'une fuite calibrée, la valeur ainsi mesurée est d'environ 30%. Par conséquent, dans notre configuration, la mesure d'efficacité réalisée à partir des courbes de relâchement de la source d'ions reliée à la cible n'est pas possible.

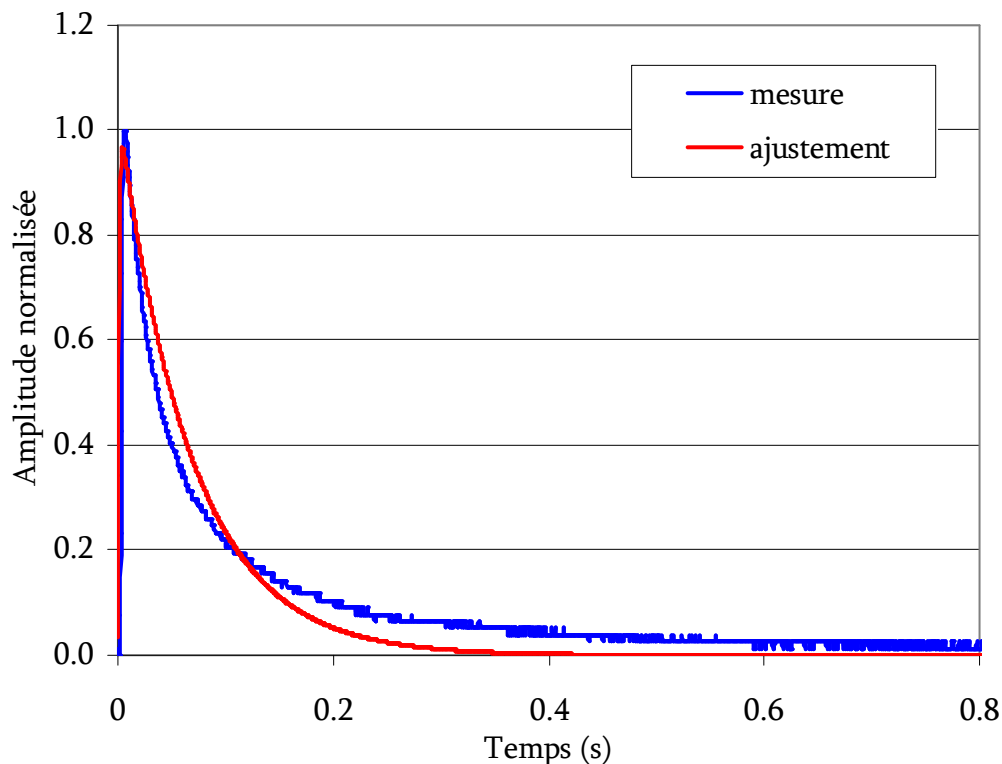


Fig. 93 _ Réponse à une impulsion d'argon injectée dans la source (courbe bleue) et son ajustement (courbe rouge).

3.4. Mesures de temps de réponse.

Le but est de mesurer les temps de transformation des atomes He, Ne, Ar, Kr et Xe en ions dans des conditions de fonctionnement de la source identiques. Ces mesures ont été effectuées en injectant des impulsions de gaz directement dans la source et dans la cible. L'influence de la température de la cible sur les temps de réponse est étudiée. La température est contrôlée à l'aide du four et varie de 300 à 1800 K. Les conditions (C4) de l'environnement dans lequel est placée la source ont été décrites dans la partie 2.4.

3.4.1. Mesures à 1400 K pour les différents gaz, injection pulses de gaz côté cible.

A titre d'exemple, les réponses à une impulsion de gaz sur la vanne rapide située à l'arrière de la cible sont présentées pour les différents gaz. Les mesures sont effectuées dans les mêmes conditions de fonctionnement de la source et pour une température de la cible de 1400 K. Les atomes injectés doivent traverser la cible puis rejoindre la chambre source où ils sont ionisés. La réponse présentée sur le graphique du haut (Fig. 94) correspond à la réponse totale qui est la

convolution des réponses de la cible et de la source. Elle est mesurée pour différents gaz. On observe que les ions les plus lourds sont les plus lents à sortir sous forme d'ions.

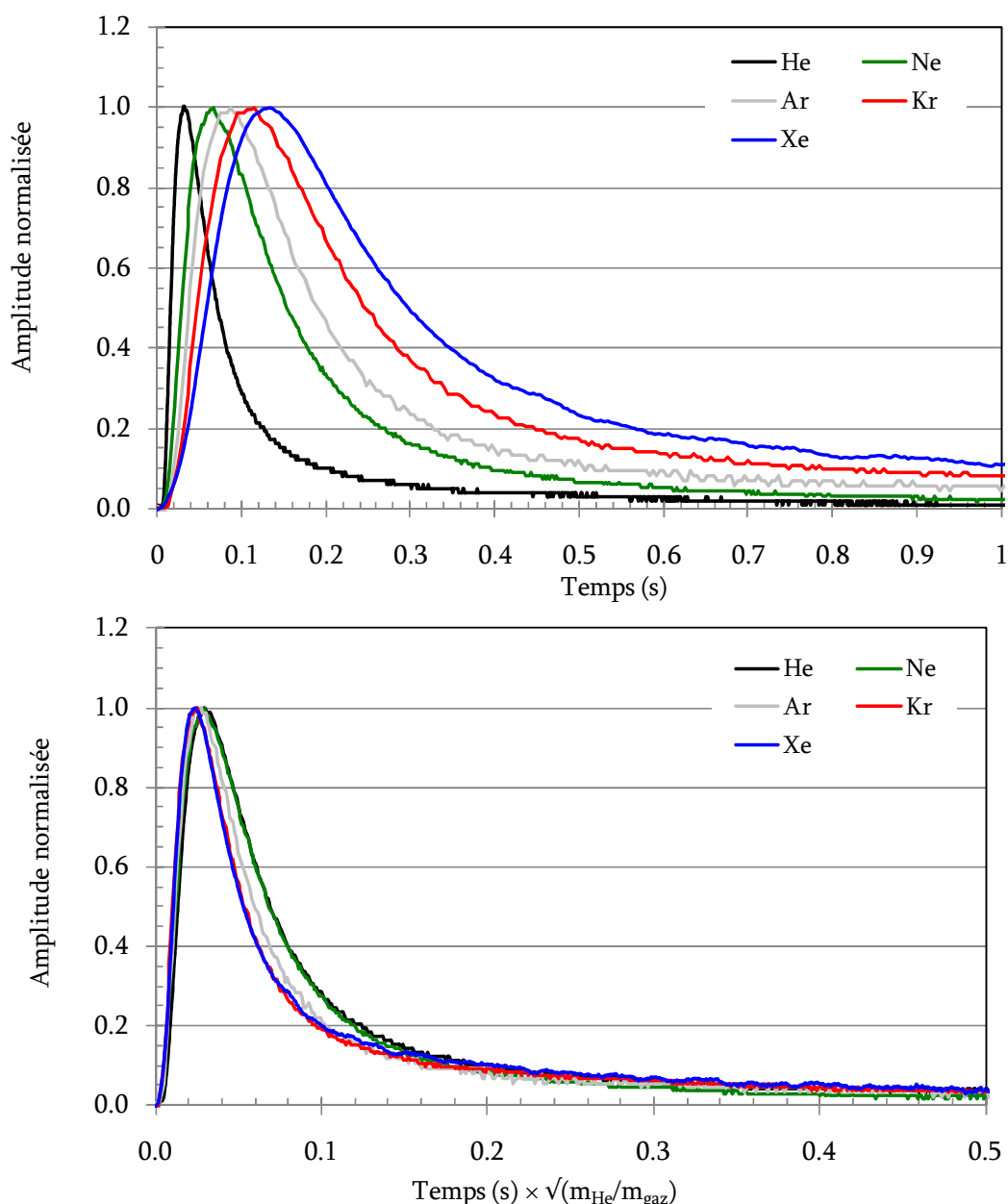


Fig. 94 _ Réponses à une impulsion de gaz sur la vanne rapide de la cible à 1400 K, pour différents gaz dans les mêmes conditions de fonctionnement de la source. Sur le graphique du bas, l'échelle de temps est transformée

La vitesse d'effusion d'un gaz varie avec la racine carrée de sa masse. Il paraît donc logique que les ions les plus lourds effusent plus lentement. Afin de constater si le décalage observé est uniquement dû à la différence de masse entre

les éléments, une échelle de temps factice est adoptée. Pour tous les éléments, l'échelle de temps est transformée en la multipliant par la racine du rapport de la masse de l'hélium sur la masse de l'élément. Le graphique ainsi obtenu est présenté en bas de la (Fig. 94). Les courbes devraient être confondues si la réponse était uniquement gouvernée par l'effusion atomique. Un faible écart entre les gaz subsiste après cette correction, son origine est interprétée dans le paragraphe suivant.

3.4.2. Mesures à 1400 K pour les différents gaz, injection des pulses de gaz côté source.

La mesure est maintenant effectuée à l'aide de la vanne rapide placée à l'arrière de la source. Les atomes effusent donc dans la source où ils sont rapidement ionisés et leur histoire est peu affectée par la présence de la cible.

Les réponses à des impulsions de gaz injectées dans la source et dans la cible, pour une température de la cible de 1400 K, ont été intégrées pour donner le taux de sortie dans différents gaz en fonction du temps (Fig. 95). Il apparaît que le temps de réponse à l'impulsion de gaz côté cible est dans tous les cas supérieur d'un facteur 3 à celui côté source.

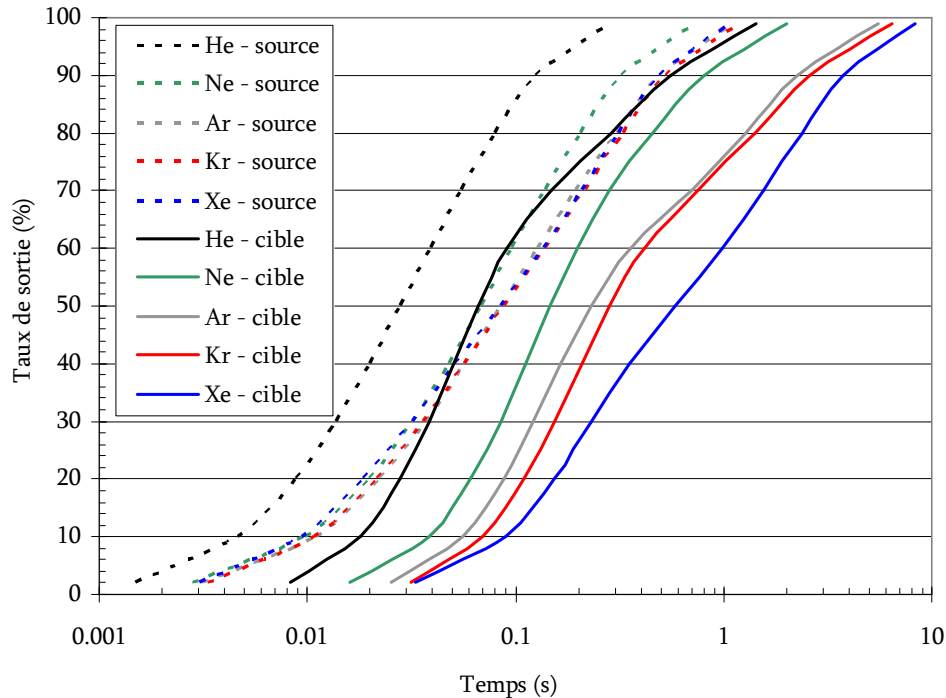


Fig. 95 _ Comparaison des taux de sortie des différents gaz en fonction du temps pour une injection de gaz côté cible et côté source.

La transformation de l'échelle de temps, utilisée sur le graphique du bas (Fig. 94), pour s'affranchir de l'effet de la masse sur le temps de réponse, est adoptée sur le graphique ci-dessous (Fig. 96). Dans le cadre de cette transformation, ce sont les éléments les plus lourds qui sont les plus rapides. Cet effet est dû à leur potentiel de première ionisation qui se trouve être décroissant avec la masse. Les éléments les plus lourds sont donc ionisés et extraits plus rapidement. Le temps de réponse de la source étant court par rapport au temps de réponse « cible + source », c'est aux temps courts que le temps de réponse de la source influence le temps de réponse « cible + source », d'où le faible écart observé sur le graphique du bas (Fig. 94).

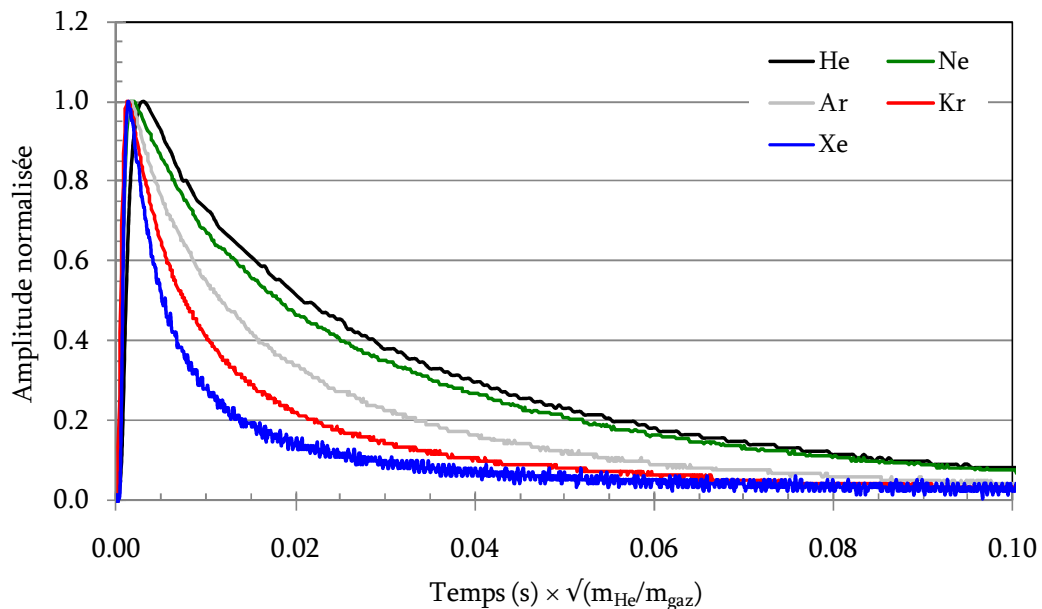


Fig. 96 _ Réponses à une impulsion de gaz sur la vanne rapide de la source, pour différents gaz dans les mêmes conditions de fonctionnement de la source. L'échelle de temps est transformée de la racine des masses. La température de la cible est de 1400 K.

3.4.3. Influence de la température de la cible.

La cible est chauffée à l'aide du four. L'évolution des temps de réponse en fonction de sa température a été étudiée. Le graphique du haut (Fig. 97) montre que le temps de réponse à une impulsion de gaz injectée côté cible diminue lorsque la température croît. Lorsque les impulsions de gaz sont injectées côté source, l'effet de la température n'est pas observable (graphique du bas Fig. 97). Les atomes passent peu de temps dans la cible. Le très faible décalage observé entre les différentes courbes (graphique du bas Fig. 97) est dû au régime source qui peut avoir légèrement changé entre chaque changement de température. Toutefois, il apparaît que la température de la cible influence peu le fonctionnement de la source.

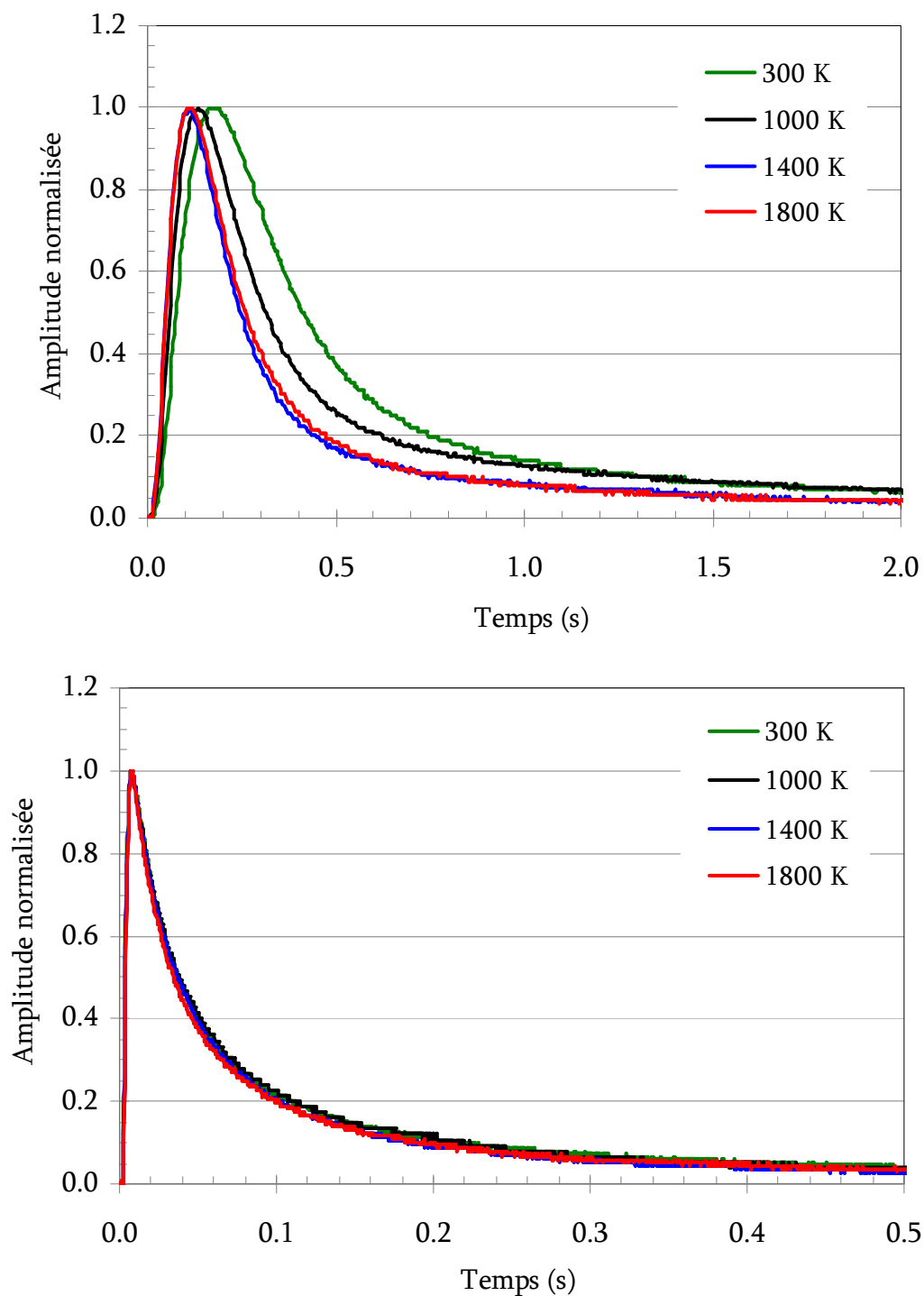


Fig. 97_ Réponses à une impulsion de krypton pour différentes températures de la cible. Sur le graphique du haut, le gaz est injecté côté cible et sur le graphique du bas côté source.

Peu après la dernière mesure à 1800 K, un incident dû à un court circuit sur le four est survenu. Il n'a pas été possible de déterminer l'instant exact du court circuit du four, lors des mesures à 1800 K, le problème était peut être déjà présent. Cela expliquerait le faible écart entre les réponses à une impulsion injectée dans la cible à 1400 K et 1800 K.

3.5. Résultats complémentaires.

Des mesures de caractérisation de cet ensemble cible-source ont été menées pour pouvoir effectuer les tests présentés dans ce mémoire dans de bonnes conditions. Elles ne sont pas directement utiles à la compréhension du comportement de l'ECS mais elles seront essentielles à la définition du système de production de SPIRAL 2 et sont données à ce titre en annexe 3.1, 3.2 et 3.3.

4. Conclusion.

Une nouvelle étape vers la production d'éléments gazeux avec le projet SPIRAL 2 a été franchie. La source ECR utilisée à cette fin a été décrite en détails. Les motivations et enjeux d'un tel développement ont été présentés.

Des mesures d'efficacité d'ionisation et de temps de réponse sur l'ECS-ECR (MONOBOB couplée à une cible de graphite reproduisant la géométrie de la cible d'UCx) ont été réalisées pour les gaz nobles He, Ne, Ar, Kr et Xe dans des conditions de fonctionnement identiques. Ces mesures ont permis d'estimer (voir le chapitre 4) l'impact qu'a le processus d'effusion-ionisation sur l'efficacité totale de transformation des atomes radioactifs en ions. De plus, elles constituent une étape cruciale dans l'estimation des taux de production des gaz nobles et des alcalins en sortie de source.

Les prochaines mesures devront être effectuées à plus haute température, par couplage de la source avec la version 5 du four qui devrait permettre d'atteindre une température de cible de 2000°C.

Chapitre 4

Estimation des intensités des faisceaux pour SPIRAL 2

1. Introduction.

L'estimation de l'intensité des faisceaux d'ions radioactifs qui seront produits avec SPIRAL 2 est importante pour que les futurs utilisateurs puissent déterminer préalablement à leur expérience le taux de réaction qu'il sera possible d'obtenir et ainsi le temps d'expérience requis.

A partir des résultats qui ont été obtenus dans les deux chapitres précédents, ces estimations vont être affinées. Plus particulièrement, l'efficacité des processus d'effusion et d'ionisation sera abordée dans ce chapitre. De nombreuses estimations de l'efficacité de relâchement de cibles d'UCx ont été effectuées dans d'autres laboratoires [215-218]. Ces données expérimentales ont été obtenues soit à partir de la comparaison des intensités des faisceaux délivrés aux taux de production estimés dans la cible [215], soit à partir de la mesure de la distribution en temps de sortie des ions hors de la cible. Ces données prennent en compte à la fois la diffusion hors du grain, l'effusion entre les grains de la cible et l'effusion dans les espaces vides (entre les pastilles cibles, dans le conteneur cible, dans le tube de transfert et dans la source). Etant donné les différences de géométrie de la cible et du système de production, ces valeurs ne peuvent être directement comparées aux estimations effectuées dans ce chapitre qui vont concerner principalement l'effusion dans les espaces vides.

Pour les alcalins, les fonctions de relâchement n'ont pas pu être mesurées. Elles diffèrent de celles mesurées pour les gaz nobles par le collage des alcalins sur les surfaces de la cavité cible. A l'aide de simulations avec le code RIBO, le nombre de collisions dans la cavité cible est estimé. En utilisant le temps de résidence des alcalins sur le graphite mesuré dans le second chapitre, les fonctions

de relâchement des alcalins sont déduites. De la même manière que pour les gaz nobles, l'efficacité d'effusion dans la cavité cible des isotopes d'alcalins radioactifs est calculée en fonction de leur durée de vie. Enfin, l'efficacité d'ionisation de la source à ionisation de surface (SIS) de SPIRAL 2 est calculée dans ses conditions de fonctionnement nominal.

2. Estimation de l'efficacité d'effusion dans la cible de SPIRAL 2 pour les gaz nobles.

Dans le troisième chapitre, le temps de réponse à une impulsion de gaz injectée dans la cible a été mesuré en fonction de la température de la cible. Cette mesure rend compte du processus d'effusion dans la cible de production, dans le tube de transfert et dans le volume source. Au cours de ce processus, les noyaux radioactifs peuvent se désintégrer. A partir des fonctions de relâchement mesurées, il est possible de calculer l'efficacité du processus d'effusion en fonction de la durée de vie du noyau radioactif. Le calcul est effectué à partir de la formule suivante :

$$\varepsilon_{eff}(\lambda) = \frac{\int_0^{\infty} R(t) \cdot e^{-\lambda \cdot t} \cdot dt}{\int_0^{\infty} R(t) \cdot dt} \quad (46)$$

Avec $R(t)$ la fonction de relâchement (réponse à une impulsion de gaz), ε_{eff} l'efficacité d'effusion et λ la constante de désintégration du noyau. Ce calcul est effectué pour les gaz He, Ne, Ar, Kr et Xe et pour différentes températures de la cible. Les graphiques (Fig. 98 à Fig. 102) présentent les résultats ainsi obtenus, l'efficacité d'effusion y est présentée en fonction de la période radioactive. Les lignes verticales correspondent aux isotopes des différents gaz nobles.

Les mesures ont été effectuées avec une cible en graphite de géométrie identique à la cible de production en UCx. Pour les gaz nobles, le temps de vol est égal au chemin parcouru divisé par la vitesse d'agitation thermique des atomes. Le parcours moyen dépend donc de la géométrie du système, de la masse de l'élément, de la température et dans une moindre mesure de la distribution angulaire de vitesse des atomes lorsqu'ils quittent une zone de contact. Par conséquent, il est considéré que l'élément constituant la cible influence peu la vitesse d'effusion des gaz nobles au travers de celle-ci.

Les gaz produits par fissions dans la cible d'UCx sont majoritairement le xénon et le krypton. Pour ces deux gaz (Fig. 98 et Fig. 99), il apparaît que la température de la cible ne fait varier l'efficacité d'effusion que de 10% au maximum. Pour les

isotopes ayant une durée de vie inférieure à 500 ms, l'efficacité d'effusion sera inférieure à 50%.

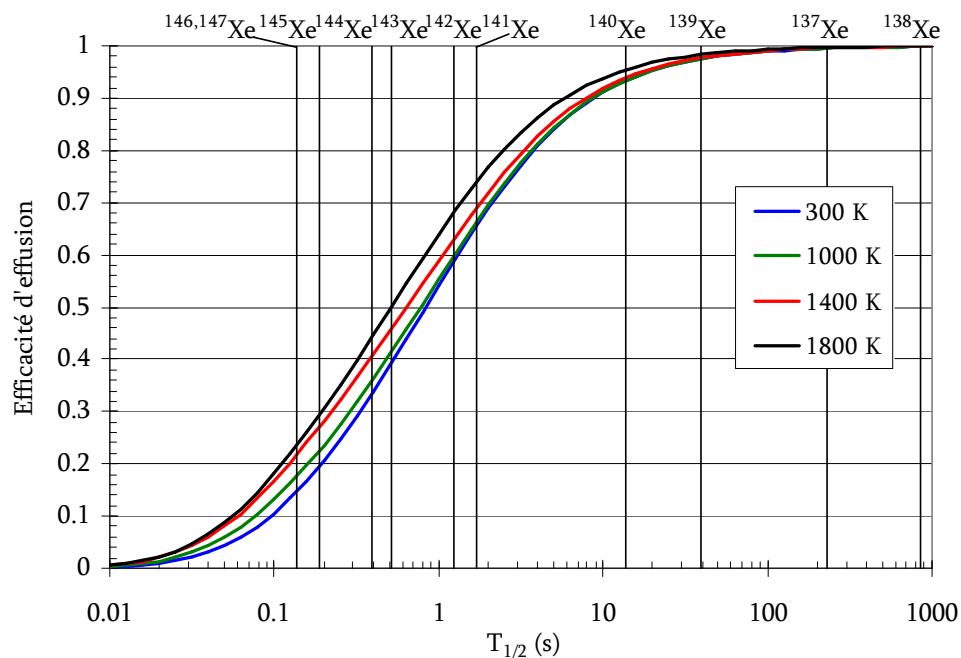


Fig. 98 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour le xénon en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

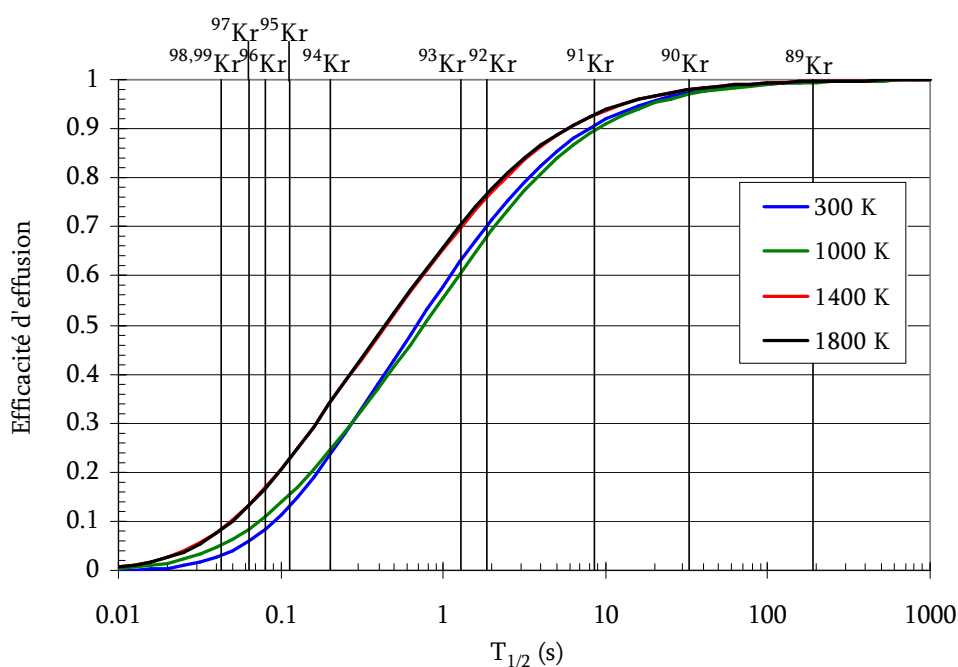


Fig. 99 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour le krypton en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

Il est envisagé de produire l' ^6He en bombardant une cible d'oxyde de béryllium avec le flux de neutrons produits par le convertisseur (voir partie 2.1 du chapitre 1). La cible de BeO n'est pas encore conçue. Elle pourrait présenter une géométrie similaire à celle de la cible d'UCx. Les valeurs données sur la Fig. 100 donnent donc une bonne indication de l'efficacité d'effusion de l'hélium dans une telle cible.

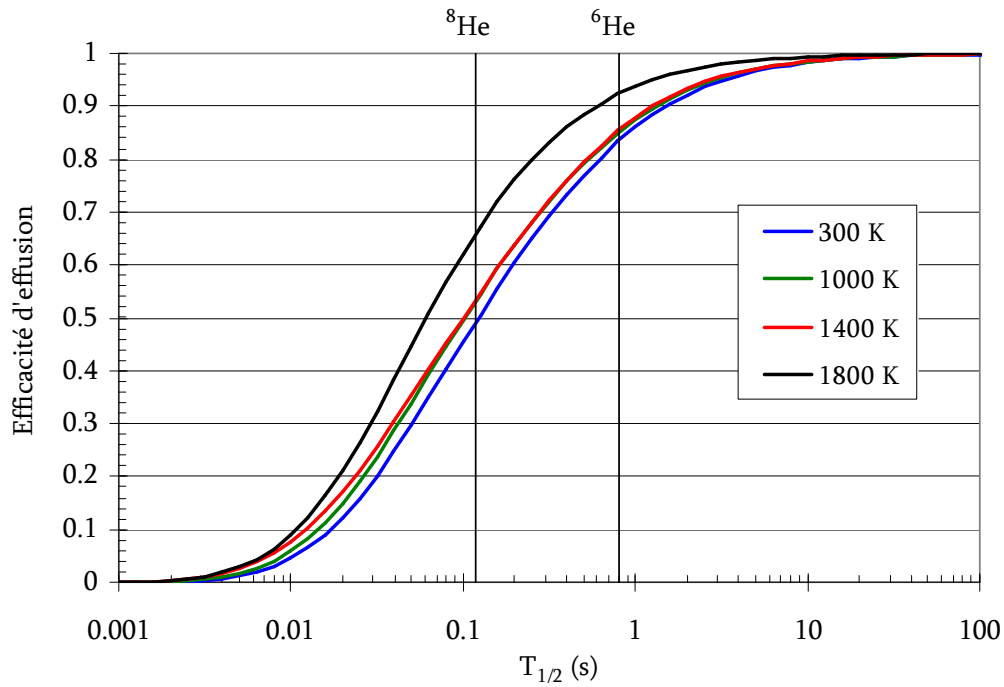


Fig. 100 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour l'hélium en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

Les courbes d'efficacité d'effusion pour l'argon et le néon sont données à titre indicatif (Fig. 101 et Fig. 102).

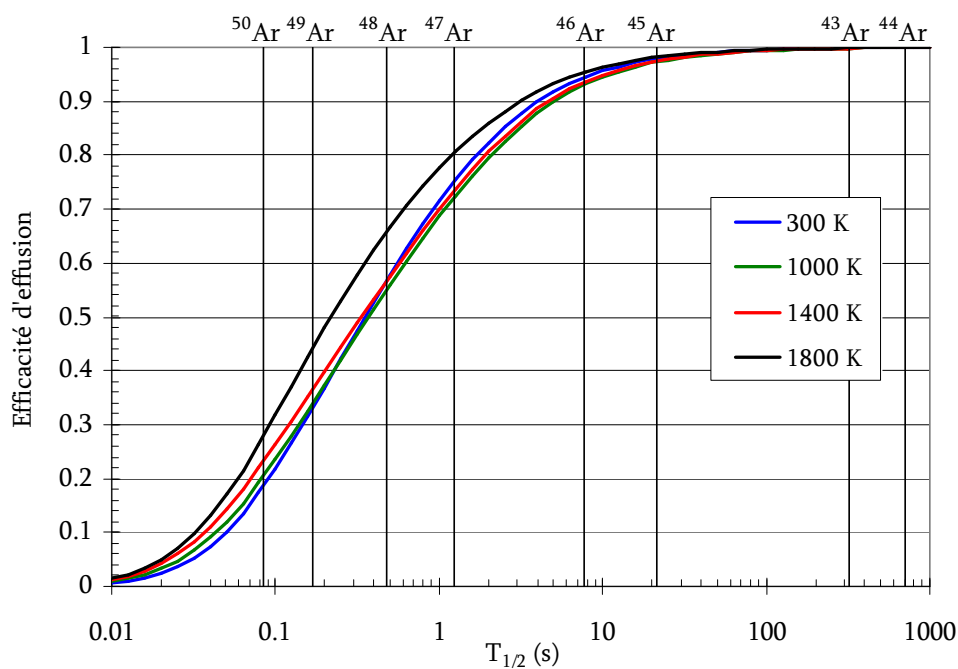


Fig. 101 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour l'argon en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

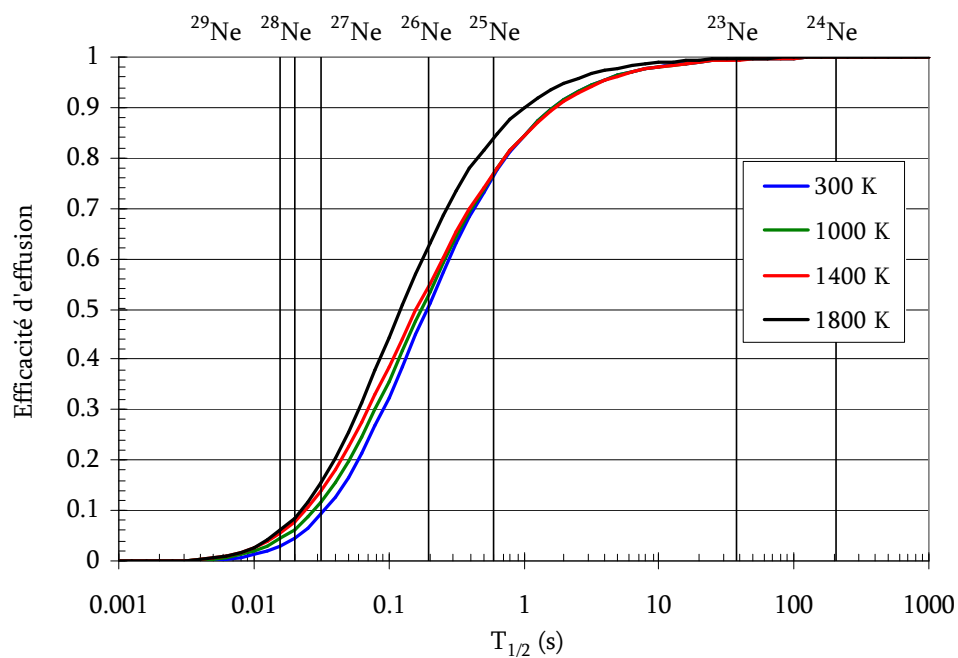


Fig. 102 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour le néon en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

Il apparait que la température de la cible influence assez peu l'efficacité d'effusion. Ceci peut s'expliquer de la manière suivante : le tube de transfert et la chambre de la source sont refroidis à température ambiante. L'effusion ayant lieu au travers de la cible mais aussi du tube de transfert et de la source, la température moyenne vue par les atomes est plus faible que la température de la cible. Rappelons aussi que le four permettant de chauffer la cible a présenté un dysfonctionnement juste après la mesure à 1800°C (voir la partie 3.4.3 du troisième chapitre).

3. Vers une meilleure estimation de l'intensité des faisceaux d'alcalins délivrés avec SPIRAL 2.

A partir des fonctions de relâchement mesurées pour les gaz nobles, il est possible d'estimer celles que l'on obtiendrait pour les alcalins en ajoutant au temps de vol la contribution du temps de résidence des alcalins à chaque contact. Pour cela, des simulations permettant de déterminer le nombre de collisions ayant lieu dans la cible ont été effectuées à l'aide du code Monte Carlo RIBO [184]. Le temps de résidence des alcalins sur une surface en carbone mesuré dans le chapitre 2 partie 3.4.2 est aussi utilisé.

Ensuite, l'efficacité de la source à ionisation de surface de SPIRAL 2 a été calculée à l'aide du code Monte Carlo qui a été conçu (voir l'annexe 2.1).

3.1. Simulation des fonctions de relâchement de l'ECS-ECR.

Tout d'abord, l'objectif est de reproduire la forme des fonctions de relâchement mesurées expérimentalement sur l'ECS (Ensemble Cible-Source) comportant la source ECR (*Electron Cyclotron Resonance*) (voir la partie 3.4 du chapitre 3) avec le code RIBO.

L'ECS-ECR est composé de l'association d'une cible en carbone, reproduisant la géométrie de la cible d'UCx de SPIRAL 2, à la source ECR MONOBOB (source à BOBbines pour ions-MONO-chargés). La géométrie simulée avec RIBO est présentée sur le schéma ci-dessous (Fig. 103). Le volume de la source ECR est relié au conteneur cible par un tube de transfert. La cible est composée de 19 barillets agencés selon un réseau hexagonal. L'ensemble des barillets est maintenu dans un conteneur enserrant au plus près le contour des barillets extérieurs. Chacun de ces barillets est composé de 80 pastilles de 1 mm d'épaisseur. Elles sont maintenues à l'aide d'une grille dont les trous correspondent aux orifices entre les barillets. Les atomes sont générés soit dans la source (injection source) soit dans un orifice pratiqué dans le barillet central à l'arrière de la cible (injection cible). Pour rendre compte de la fonction de relâchement de l'ECS-ECR, la simulation prend fin lorsque les atomes sortent par l'orifice de l'électrode plasma. Pour la fonction de

relâchement de la cible seule, la simulation prend fin lorsque les atomes sortent du conteneur de la cible.

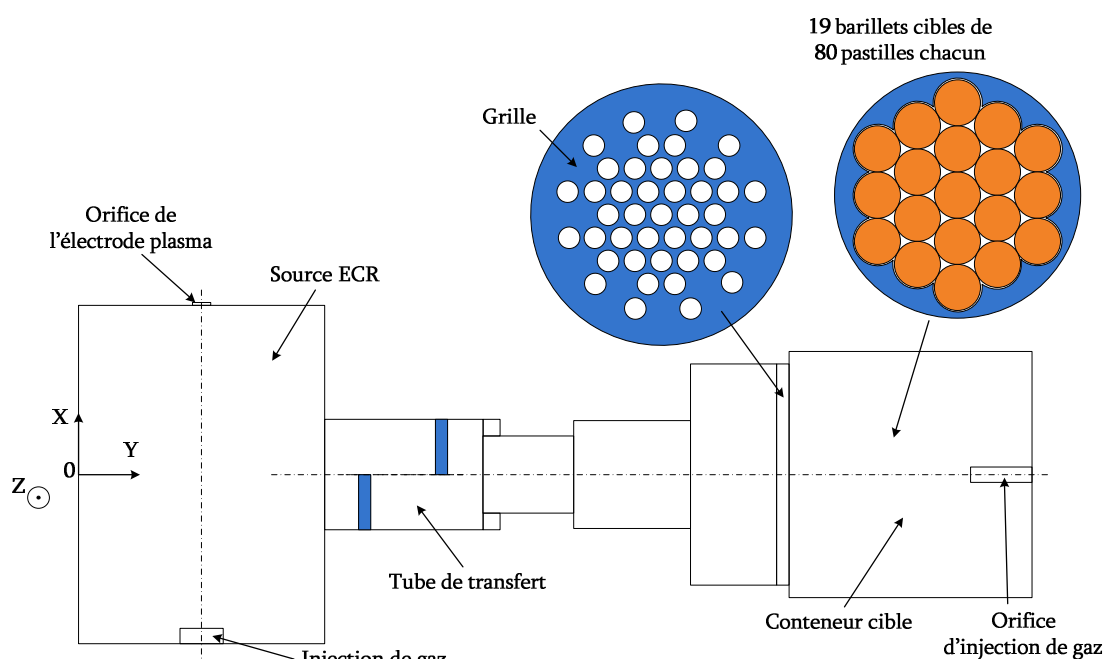


Fig. 103 _ Schéma de la géométrie de l'ECS-ECR simulée avec RIBO.

3.1.1. Simulation de la réponse de l'ECS-ECR à une impulsion dans la source.

Dans un premier temps, nous nous attachons à reproduire la réponse à une impulsion injectée directement dans la source. En effet, avant de simuler la réponse de l'ECS-ECR à une impulsion dans la cible, il faut s'assurer que la partie source est correctement prise en compte. Dans ces calculs, la contribution de la cible devrait être faible. Par conséquent pour simplifier les calculs la géométrie de la cible est simplifiée. Les barillets sont considérés pleins et sans porosité, ils ne sont pas découpés en 80 pastilles. Ainsi, les atomes ne peuvent effuser que dans les régions vides (chambre de la source, tube de transfert, vide entre les barillets et entre le conteneur et les barillets). Les premiers calculs effectués ont montré que les temps de réponse obtenus par la simulation étaient plus longs que ceux des mesures. Dans les simulations l'ionisation des atomes, leur confinement dans le plasma et leur extraction ne sont pas pris en compte : les atomes ne sortent de la source que par effusion. Or, ces phénomènes vont accélérer la sortie des atomes de la source. Pour rendre compte de ces effets dans les simulations, la taille de l'orifice de sortie (rayon = 3,5 mm) sera artificiellement agrandie. Les deux graphiques (Fig. 104) présentent la comparaison des fonctions de relâchement

mesurées expérimentalement et simulées avec RIBO pour différents rayons de l'orifice de sortie. Toutes les surfaces sont considérées à température ambiante.

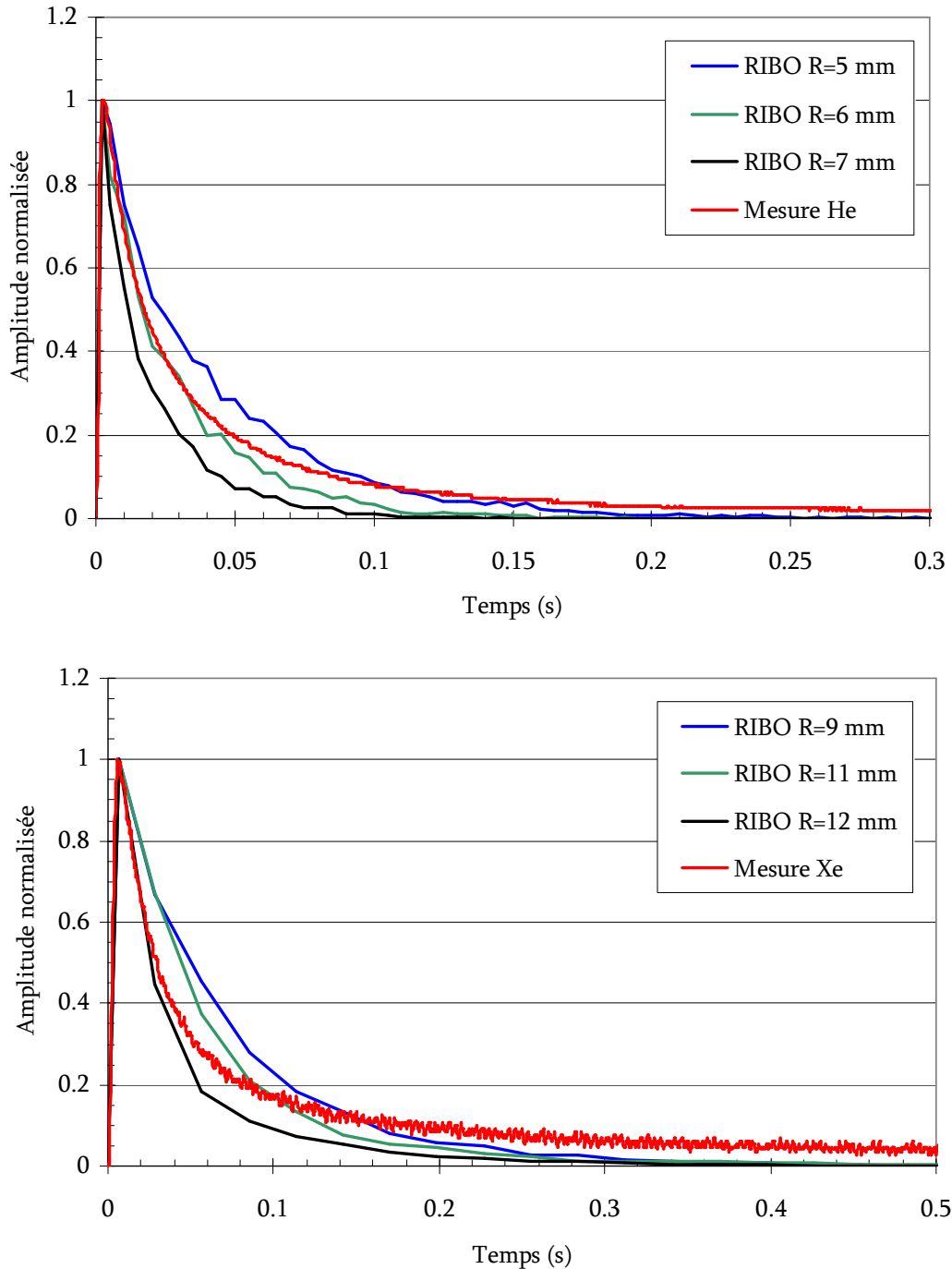


Fig. 104 _ Comparaison des fonctions de relâchement de la source, pour l'hélium (figure du haut) et pour le xénon (figure du bas), mesurées expérimentalement et simulées avec RIBO, pour différents rayons de l'orifice de sortie.

Pour que les simulations reproduisent correctement les mesures, le rayon de l'orifice de sortie doit être ajusté pour chaque gaz. Le xénon étant mieux ionisé que l'hélium, il faut un orifice plus important pour en rendre compte. Les rayons de l'orifice de sortie utilisés pour que la simulation reproduise au mieux les mesures sont respectivement 6 mm, 6,5 mm, 8 mm, 11 mm et 12 mm pour l'hélium, le néon, l'argon, le krypton, et le xénon.

Pour ces valeurs de rayon, la montée et la première partie de la descente des fonctions de relâchement sont bien reproduites. Néanmoins, les fonctions de relâchement mesurées présentent une composante plus lente due aux atomes qui effusent dans la cible. La géométrie de la cible simulée a été simplifiée ce qui peut expliquer ces écarts. Le but étant de reproduire la fonction de relâchement à une impulsion sur la source, ces simulations restent satisfaisantes. La simulation des fonctions de relâchement à une impulsion sur la cible est étudiée dans la partie suivante. Les valeurs des rayons de l'orifice de sortie déterminées dans cette partie y seront utilisées.

3.1.2. Simulation de la réponse de l'ECS-ECR à une impulsion dans la cible.

La seconde étape consiste à simuler les réponses de l'ECS-ECR aux impulsions de gaz injectées à l'arrière de la cible afin de déterminer le nombre de collisions effectuées par les atomes lors du transit dans la cible.

Une première simulation est effectuée avec une géométrie de cible simplifiée (barillets pleins, non poreux) pour l'hélium à température ambiante et avec un rayon de l'orifice de sortie de la source de 6 mm. Les résultats sont présentés sur la Fig. 105. Le temps de réponse ainsi obtenu (courbe bleue) est plus court que celui des mesures (courbe rouge). Dans la réalité, chaque barillet est composé de 80 pastilles superposées. L'espace entre ces pastilles est faible ($< 100 \mu\text{m}$). Néanmoins, les atomes peuvent effuser dans cet espace. Cela conduit à un allongement des temps de transit dans la cible. Par conséquent, nous avons tenté de simuler, avec RIBO, une géométrie prenant en compte tous les espaces entre les pastilles. Dans ce cas, le nombre de surfaces et de volumes à définir est important et il s'est avéré que le code ne pouvait le gérer [219].

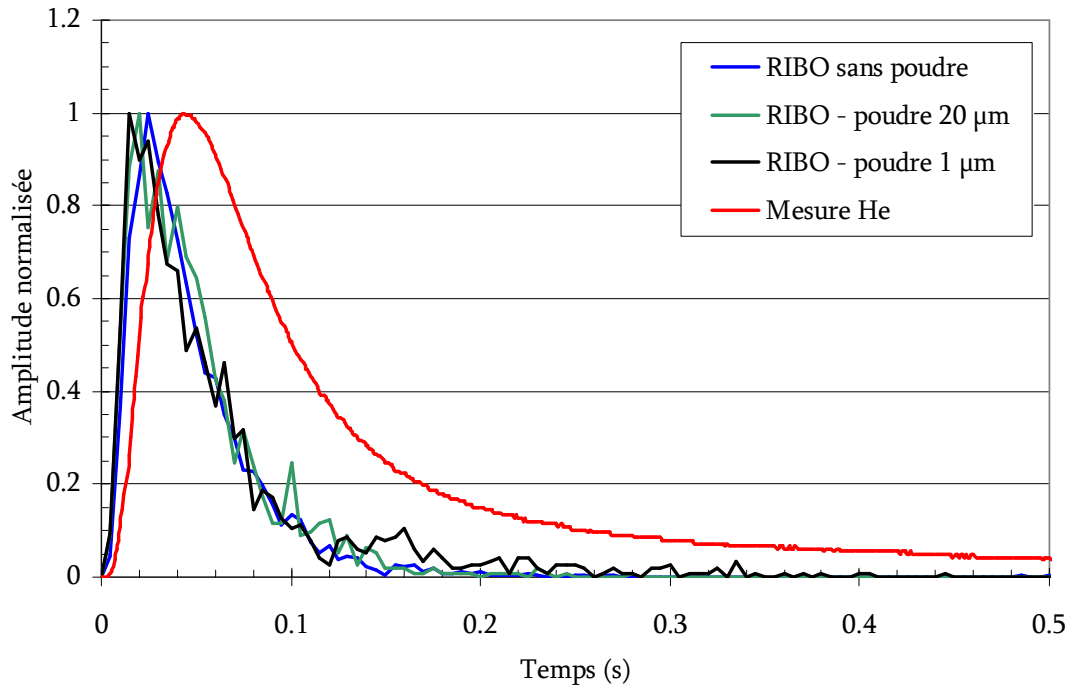


Fig. 105 _ Comparaison des fonctions de relâchement de la cible, pour l'hélium mesurées expérimentalement et simulées avec RIBO.

3.1.2.1. Prise en compte de l'effusion entre les pastilles par l'effusion entre les grains.

Par la suite, nous avons tenté de rendre compte de cette géométrie complexe en activant l'option « effusion entre les grains » sous RIBO. Elle consiste à déclarer au code des volumes contenant de la poudre dont la taille du grain est spécifiée. Les atomes peuvent alors effuser dans les espaces entre les grains de cette poudre sans re-pénétrer dans les grains. Nous avons donc déclaré que chaque barillet de la cible contenait de la poudre. Les résultats obtenus sont présentés sur le graphique ci-dessus (Fig. 105). Rappelons que la courbe bleue correspond à la simulation avec une géométrie de cible simplifiée pour laquelle les atomes ne peuvent effuser que dans les espaces entre les barillets. Les courbes verte et noire correspondent aux simulations où les atomes peuvent effuser dans la poudre des barillets. La taille des grains de la poudre vaut respectivement 1 μm et 20 μm sur les courbes noire et verte. Les fluctuations sur ces deux courbes sont dues au manque de statistique. En effet, l'introduction de poudre augmente considérablement le temps de calcul ce qui a conduit à réduire la statistique. Il apparaît que l'ajout dans la simulation de l'effusion entre les grains dans les barillets cible n'induit pas d'importantes différences avec les simulations où seule l'effusion entre les barillets est considérée. Par contre, l'ajout de poudre augmente de plus d'un ordre de grandeur le nombre de collisions effectuées par les atomes

avant leur sortie. La distance parcourue entre chacune de ces collisions étant très faible, cela n'induit pas des temps de réponse plus longs pour les gaz nobles. Avec l'effusion entre les grains, nous ne parvenons pas à faire correspondre parfaitement nos simulations aux fonctions de relâchement mesurées. Les temps obtenus sont globalement inférieurs d'un facteur 2 aux temps mesurés.

3.1.2.2. Prise en compte de l'effusion entre les pastilles avec un seul barillet.

Puisqu'il n'est pas possible de prendre en compte les espaces entre les pastilles dans une grande cible constituée de 19 barillets, nous avons étudié l'influence de ces espaces pour un seul barillet. Une simulation RIBO a donc été effectuée pour un barillet de 8 cm de long. Sur le contour de ce barillet 6 canaux sont définis reproduisant l'espace entre les barillets dans le cas d'une cible complète (voir la Fig. 106). Deux calculs sont effectués, le premier pour un barillet plein et le second prenant en compte les espaces entre les pastilles. L'espace entre les pastilles est estimé à 100 μm . Dans le cas d'une cible constituée de 19 barillets, chaque canal entre les barillets donne accès aux espaces entre les pastilles de trois barillets. Afin d'en tenir compte dans le cas de notre unique barillet les espaces entre les pastilles sont fixés à 300 μm au lieu de 100 μm . Les atomes sont injectés d'un côté du barillet, la simulation prend fin lorsqu'ils parviennent de l'autre côté.

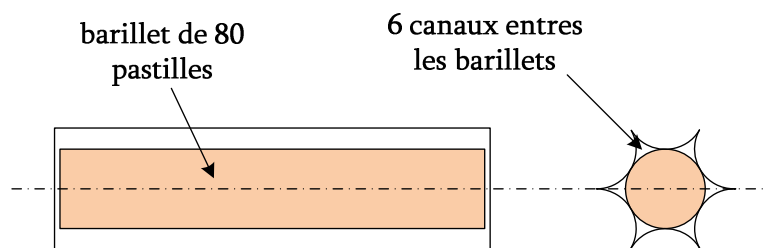


Fig. 106 _ Schéma de la géométrie simulée avec RIBO pour la prise en compte de l'effusion entre les pastilles pour un barillet.

Les calculs montrent que la prise en compte des espaces entre les pastilles induit une augmentation du nombre de collisions d'un facteur 3 et du temps de vol d'un facteur 1,8. Ces facteurs ne peuvent être appliqués aux simulations de la Fig. 105 car pour être comparables aux mesures, ces simulations prennent en compte l'effusion dans le tube de transfert et dans la source. Le nombre de collisions effectuées dans ces zones ne doit pas être multiplié par ces facteurs. Ils seront utilisés dans le cas de la simulation de la réponse de la cible seule.

3.1.3. Simulation de la réponse de la cible seule à une impulsion dans la cible.

Nous rappelons que le but est d'estimer le nombre de collisions et le temps de vol dans la cible seule afin de pouvoir calculer les temps de relâchement de la cible pour les alcalins. Un nouveau calcul est effectué pour l'hélium à température ambiante dans la cible complète (19 barillets). La simulation prend fin lorsque les atomes sortent du conteneur cible. Cela permet de déterminer le nombre de collision ayant lieu uniquement dans la cible. En effet, il ne faut pas prendre en compte les collisions ayant lieu dans le tube de transfert et dans la source ECR pour les alcalins qui seront ionisés avec la source à ionisation de surface. Pour prendre en compte les espaces entre les pastilles, le nombre de collisions et le temps de vol ainsi déterminés peuvent être multipliés respectivement par 3 et 1,8. Ces facteurs ont été déterminés dans le cas d'un barillet seul entouré de 6 espaces inter-barillet mais l'indiscernabilité des espaces inter-barillet vis-à-vis de l'effusion permet d'appliquer ces facteurs à l'ensemble des 19 barillets. Ils sont donc utilisés dans le calcul de l'efficacité d'effusion pour les isotopes d'alcalins.

3.2. Calcul de l'efficacité d'effusion pour les isotopes d'alcalins radioactifs.

A partir des résultats des simulations précédentes, il est possible de calculer les fonctions de relâchement de la cible pour les alcalins à différentes températures. Pour chaque événement de la simulation un nouveau temps de relâchement t_{rel} est calculé à l'aide de la formule ci-dessous (47). Le même calcul est effectué en appliquant respectivement les facteurs 1,8 et 3 sur le temps de vol et le nombre de collisions pour rendre compte des espaces entre les pastilles.

$$t_{rel}(alcalin, T) = t_{vol}(He, T_{amb}) \cdot \sqrt{\frac{m_{alcalin} \cdot T_{amb}}{m_{He} \cdot T}} + \chi \cdot t_r(alcalin, T) \quad (47)$$

Avec

t_{vol} : temps de vol total dans la cible calculé avec RIBO pour l'hélium à 300 K.

$m_{alcalin}$: masse de l'alcalin.

m_{He} : masse de l'hélium.

T : température de la cible, T_{amb} : température ambiante.

χ : nombre de collisions dans la cible calculé avec RIBO.

t_r : le temps de résidence pour un alcalin sur une surface en graphite à la température T . Ces valeurs proviennent de mesures effectuées sur SISTHE (Source à Ionisation de Surface de Test Hors Exploitation) (voir le chapitre 2 partie 3.4.2)

Dans la cavité cible, seule une partie des collisions s'effectue sur du graphite (conteneur cible, grille de maintien des barillets). Les autres collisions ont lieu sur les pastilles d'UCx. Le temps de résidence des alcalins sur une surface d'UCx n'est pas connu. C'est pourquoi l'estimation des fonctions de relâchement de la cible pour les alcalins a été menée uniquement à partir du temps de résidence sur le graphite.

A partir de ces fonctions de relâchement, il est possible de calculer l'efficacité du processus d'effusion en fonction de la durée de vie de l'isotope d'alcalin. Le calcul est identique à celui effectué à l'aide de l'équation (46) dans la partie 2. Il est appliqué au sodium, au potassium, au rubidium et au césium et pour différentes températures de la cible. Les graphiques (Fig. 107 à Fig. 110) présentent l'efficacité d'effusion en fonction de la période radioactive. Les courbes continues correspondent au cas où les espaces entre les pastilles ne sont pas pris en compte et les courbes pointillées au cas où ils sont pris en compte. Les lignes verticales correspondent aux isotopes des différents alcalins. Les alcalins produits par fissions dans la cible d'UCx sont majoritairement le rubidium et le césium. Les courbes d'efficacité d'effusion pour le sodium et le potassium sont données à titre indicatif. Ces courbes ne sont pas directement comparables à celles obtenues pour les gaz nobles (Fig. 98 à Fig. 102). En effet, pour les alcalins, seule l'effusion dans la cible est prise en compte. Pour les gaz, l'effusion dans la cible, dans le tube de transfert mais aussi dans la source a été prise en compte.

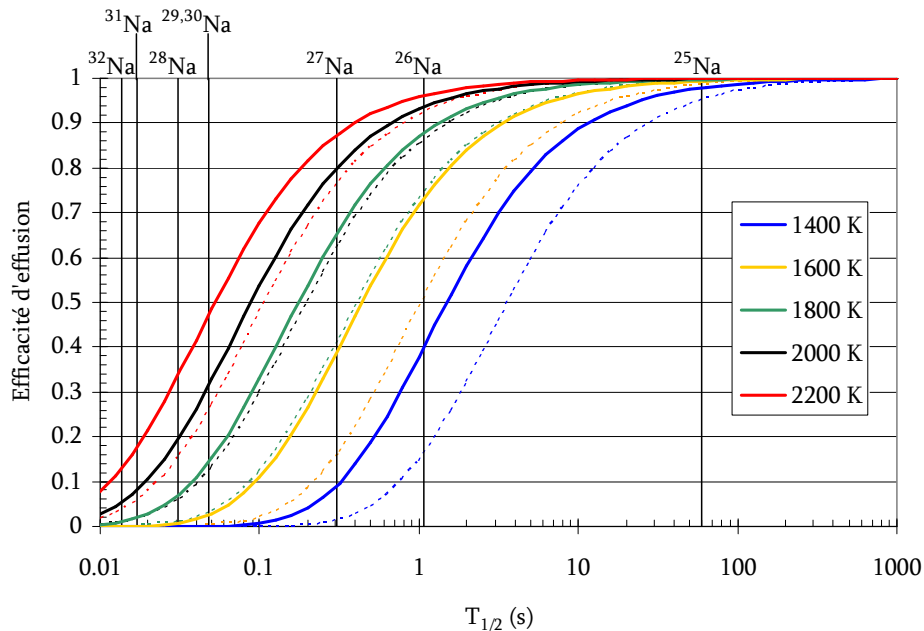


Fig. 107 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour le sodium en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

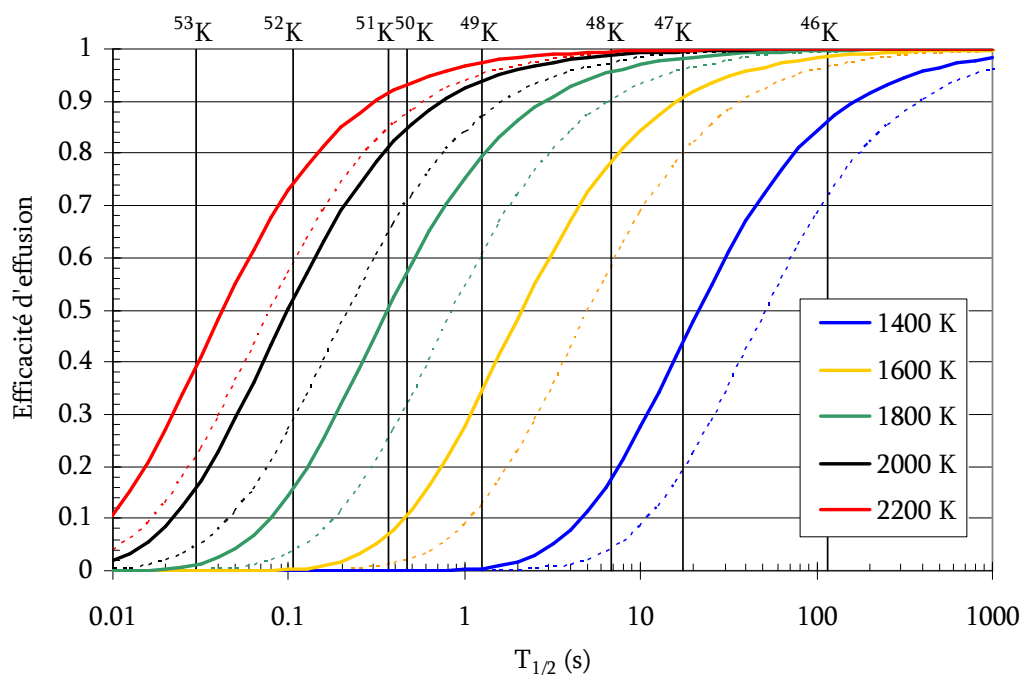


Fig. 108 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour le potassium en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

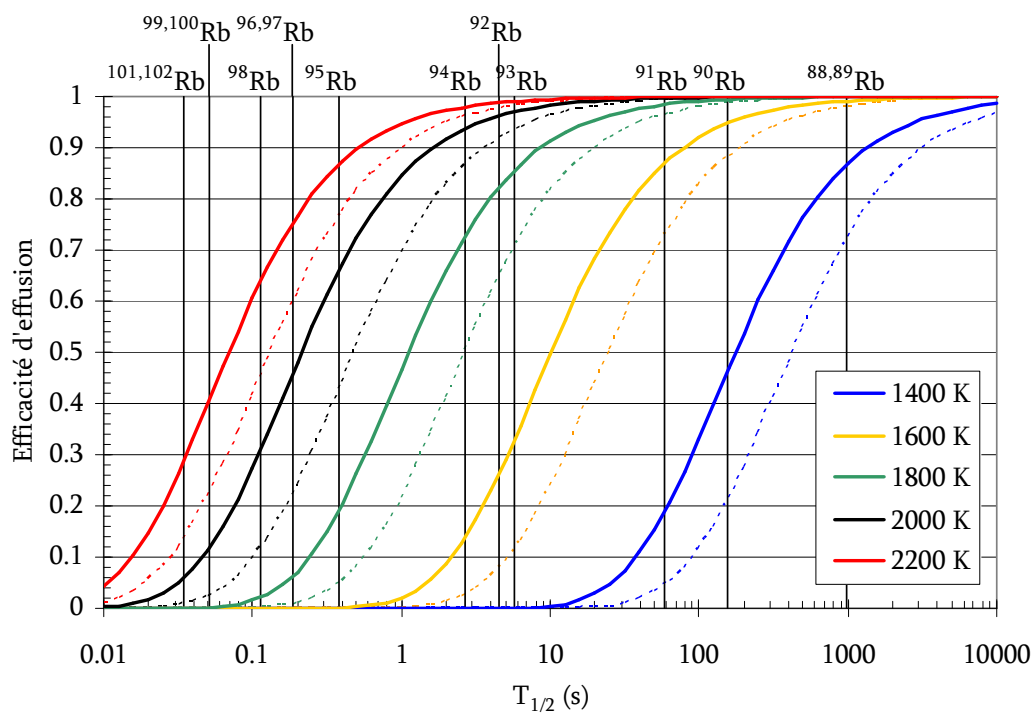


Fig. 109 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour le rubidium en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

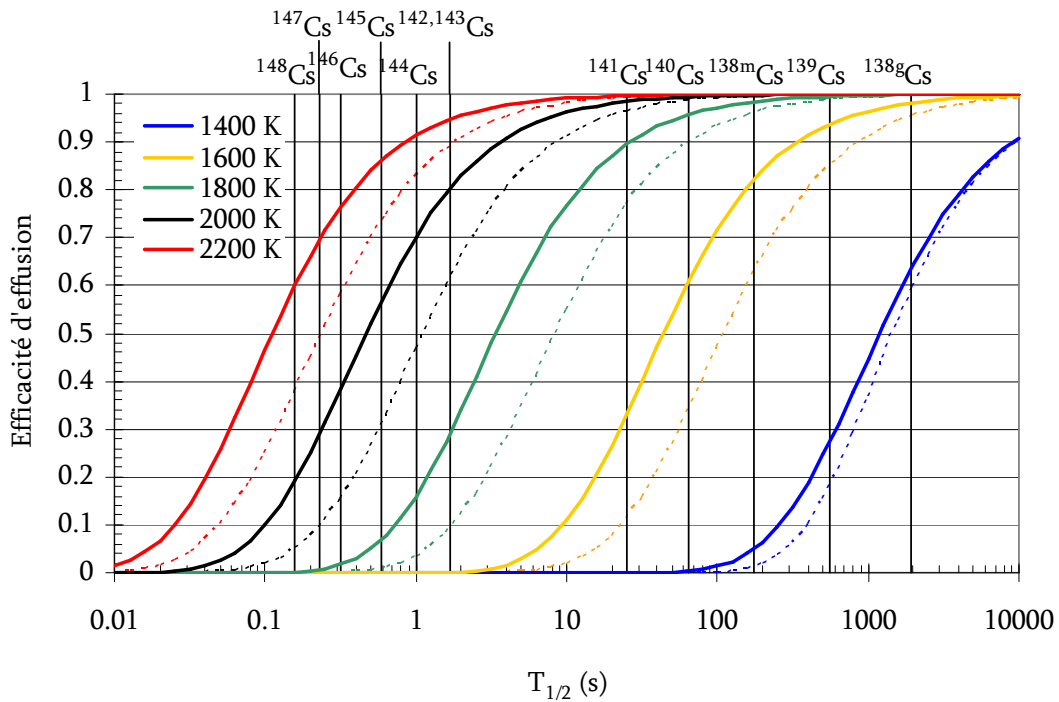


Fig. 110 _ Evolution de l'efficacité d'effusion dans la cible de production pour le césium en fonction de la température de la cible et de la durée de vie du noyau.

L'effet de la température sur l'efficacité d'effusion est nettement plus important que dans le cas de gaz nobles. Cela est dû au temps de collage des alcalins. Les graphiques illustrent la nécessité de porter la cible à haute température et particulièrement pour les alcalins présentant un temps de collage important (Cs, Rb).

3.3. Calcul de l'efficacité d'ionisation de la SIS pour les alcalins.

Un code Monte Carlo a été conçu pour rendre compte de l'histoire d'un atome dans le tube d'une source à ionisation de surface à extraction électrostatique. Il est présenté en annexe 2.1. A l'aide de ce code, nous avons calculé l'efficacité de la source à ionisation de surface de SPIRAL 2 décrite dans la partie 4.1 du second chapitre. La version actuelle du code est conçue pour une géométrie simple de ioniseur : un tube cylindrique. Le tube cylindrique de section équivalente à la section moyenne du tube de transfert et ioniseur de la SIS de SPIRAL 2 a donc été calculé. Il présente un rayon de 5,2 mm et une longueur de 22,5 cm. L'efficacité d'ionisation de ce tube a été calculée en fonction du champ électrique et de la probabilité d'ionisation de surface (P_+). Les résultats sont présentés sur les graphiques ci-dessous (Fig. 111).

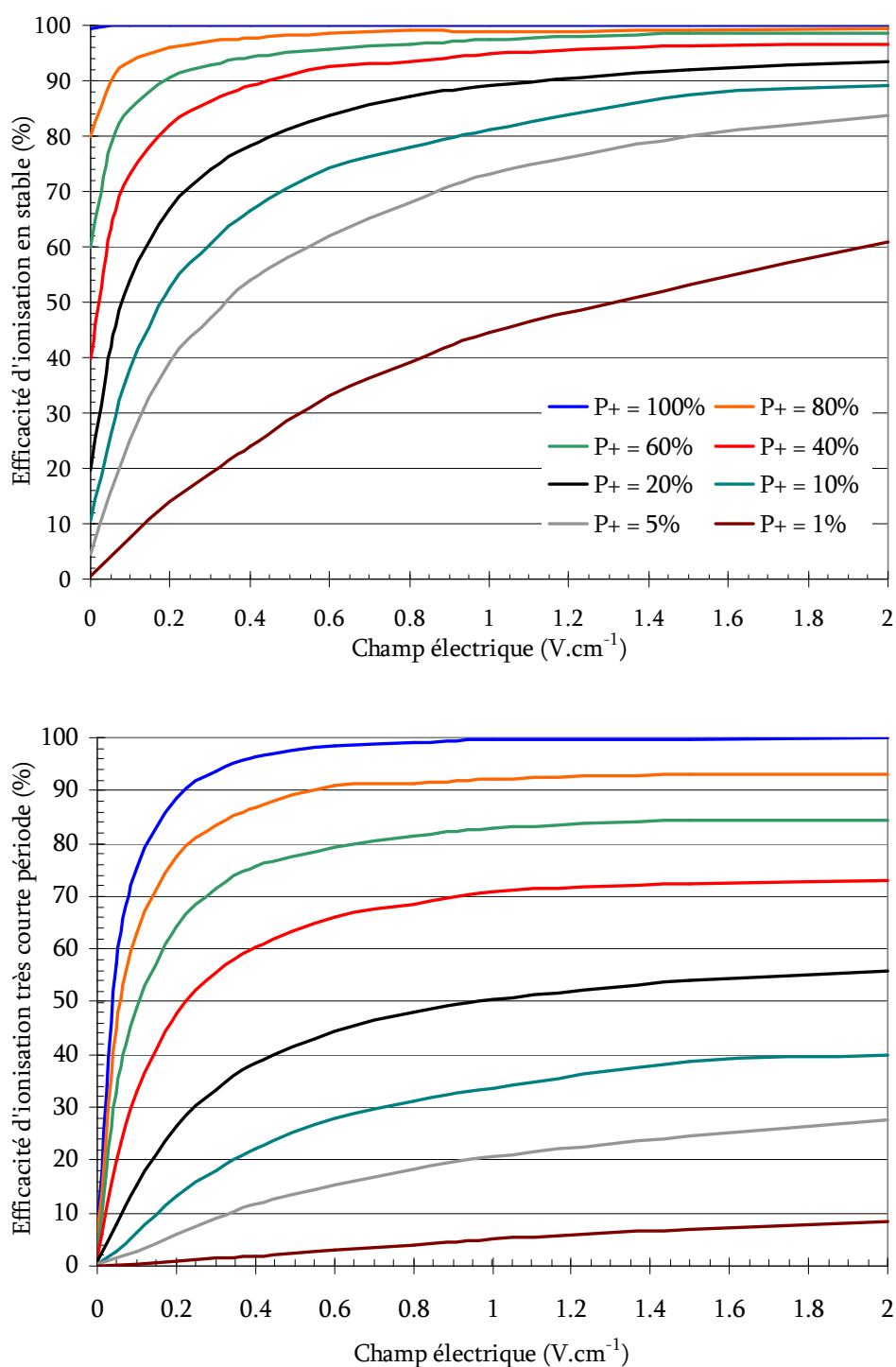


Fig. 111 _ Efficacité d'ionisation du tube ioniseur de la SIS de SPIRAL 2 en fonction du champ électrique et de la probabilité d'ionisation par contact (P_+). Le graphique du haut correspond à l'efficacité pour des éléments stables et celui du bas pour des éléments présentant une très courte durée de vie devant leur temps de résidence dans la cavité.

L'efficacité de la SIS de SPIRAL 2 présentée sur les graphiques précédents (Fig. 111) a été calculée de deux manières différentes.

Le graphique du haut correspond à l'efficacité maximale qu'il est possible d'obtenir en considérant que les éléments sortent tous par la sortie du tube. Ce cas correspond à des atomes stables injectés dans un tube relié à une cavité fermée.

Le graphique du bas correspond à l'efficacité minimale qu'il est possible d'obtenir en considérant que les éléments qui sortent par l'entrée du tube sont perdus. Ce cas correspond à une cavité reliée à un tube dans lequel sont injectés des atomes radioactifs de courte durée de vie devant leur temps de résidence dans la cavité. S'ils sortent du tube vers la cavité, leur probabilité de re-pénétrer dans le tube sera alors négligeable.

Les premières calibrations effectuées sur le prototype de la SIS (voir la partie 4.2 du second chapitre) ont montrées qu'un point de fonctionnement envisageable était de 2500 K et 1 V.cm^{-1} dans le tube ioniseur. A cette température, les probabilités d'ionisation par contact (P_+) du césium et du rubidium sur le rhénium valent respectivement 99,4% et 97,8%. Pour un champ électrique de 1 V.cm^{-1} dans le tube ioniseur, le champ électrique moyen dans le tube (tube de transfert + tube ioniseur) est de $0,86 \text{ V.cm}^{-1}$. Dans ces conditions, l'efficacité d'ionisation de la SIS pour le Cs et Rb sera proche de 100%.

Le code permet aussi de calculer le nombre de collisions ayant lieu dans le tube avant la sortie des ions de la SIS. Le graphique (Fig. 112) présente l'évolution de ce nombre de collisions avec le champ électrique et la probabilité d'ionisation de surface par contact (P_+). Dans les conditions définies précédemment, le nombre de collisions est inférieur à 10. Pour un champ électrique nul, le nombre de collisions est indépendant de la probabilité d'ionisation par contact. Il est de 463 collisions ce qui est nettement inférieur au nombre de collisions moyen estimé dans la cible de production. En effet, les calculs effectués dans la partie 3.1.3, montrent que les atomes effectuent en moyenne 6000 collisions dans la cavité cible. On s'attend donc à ce que la durée du processus d'effusion et d'ionisation ayant lieu dans la SIS soit négligeable devant le processus d'effusion dans la cavité cible. Cependant, ces nombres de contacts sont à pondérer par les temps de résidence par contact qui peuvent être très différents sur les matériaux présents dans la cible et dans la SIS.

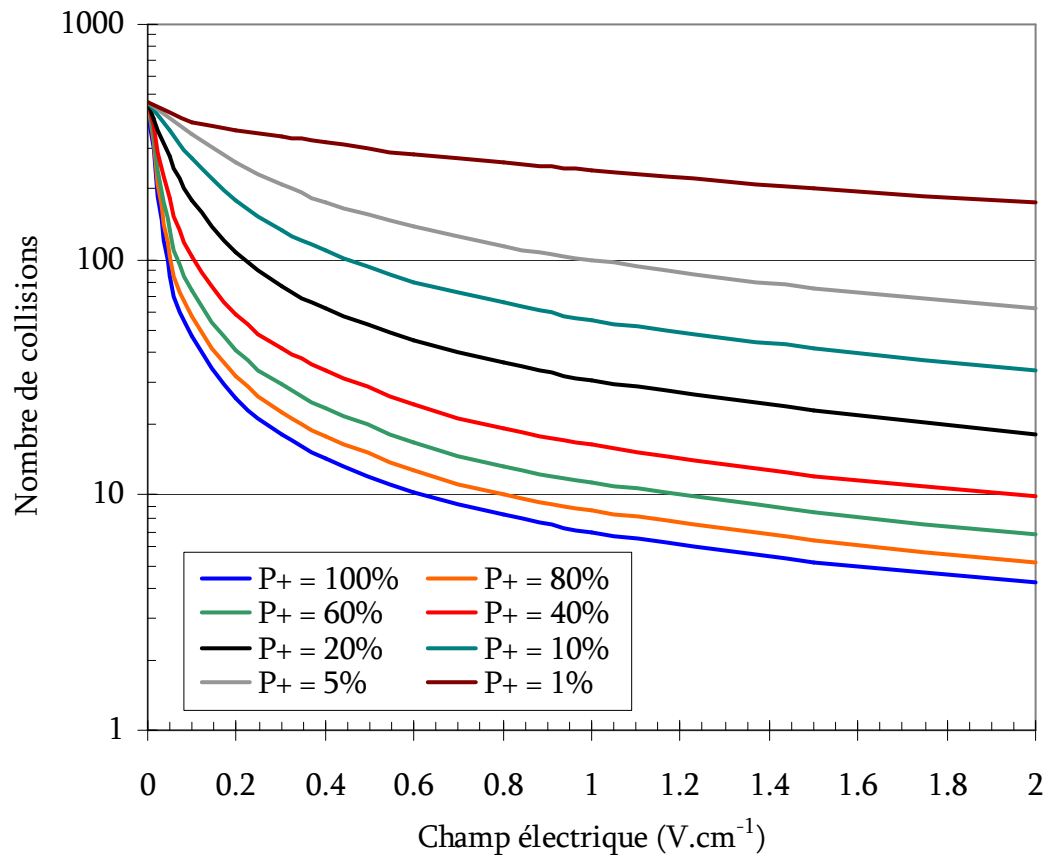


Fig. 112 _ Nombres de collisions effectuées dans le tube de la SIS de SPIRAL 2 en fonction du champ électrique et de la probabilité d'ionisation par contact.

4. Conclusion.

Au cours de ce chapitre, nous avons montré comment les résultats obtenus dans le deuxième et le troisième chapitre de cette thèse pouvaient être exploités pour améliorer l'estimation des intensités des faisceaux radioactifs qui seront délivrés avec SPIRAL 2.

A l'aide des fonctions de relâchement mesurées dans le troisième chapitre, l'efficacité du processus d'effusion pour les isotopes de différents gaz nobles a été calculée.

Dans le cas des alcalins, les fonctions de relâchement utilisées ne sont pas directement issues de mesures comme pour les gaz nobles. Des calculs avec le code RIBO [184] ont été réalisés afin de déterminer le nombre de collisions effectuées dans la cible de production. Le temps de résidence des alcalins mesuré dans le second chapitre est aussi utilisé. Les courbes présentant l'efficacité du processus d'effusion en fonction de la durée de vie des isotopes des différents alcalins montrent l'importance de porter la cible à haute température.

Par ailleurs, l'efficacité d'ionisation de la SIS couplée à la cavité cible de SPIRAL 2 a été encadrée à l'aide d'un code Monte Carlo. Dans les conditions de fonctionnement déterminées lors des calibrations de la source (voir la partie 4.2 du second chapitre), l'efficacité d'ionisation calculée pour le rubidium et le césium est proche de 100%.

Pour calculer plus précisément la valeur de l'efficacité en fonction de la durée de vie de chaque élément, il faudrait effectuer un calcul avec le code RIBO qui prenne en compte simultanément la cavité cible et le tube ioniseur doté d'un champ électrique.

Conclusions

Cette thèse entre dans le cadre du projet SPIRAL 2 qui délivrera des faisceaux radioactifs post-accélérés au GANIL à la fin de 2013. Le travail présenté dans ce manuscrit a consisté à étudier différentes étapes de production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL.

La production de faisceaux d'ions radioactifs légers constitue une véritable opportunité pour diversifier les faisceaux qui seront délivrés par SPIRAL 2. Les systèmes de production inhérents à ces faisceaux sont plus simples que l'ECS (Ensemble Cible-Source) qui comporte la cible d'UCx car moins contraints par le débit de dose ambiant. Ils pourraient constituer un choix judicieux de faisceaux de démarrage permettant de tester une partie des servitudes du module de production. Dans le cadre de cette thèse deux faisceaux légers ont plus particulièrement été étudiés.

Du côté riche en neutrons, le ^{15}C pourrait être produit dans une cible d'oxyde par réaction avec les neutrons issus du convertisseur de SPIRAL 2. Des calculs de taux de production des différents éléments dans cette cible ont été effectués à l'aide de différents codes (PACE 4, MCNPx), base de données (EAF-07) et données de la littérature [72]. Pour ces faisceaux, les taux de production potentiels avec SPIRAL 1 sont compétitifs avec ceux de SPIRAL 2. Par conséquent, l'étude de la production du ^{15}C avec SPIRAL 2 a été mise en suspens.

Du côté déficient en neutrons, c'est le développement d'un faisceau d' ^{14}O qui a été étudié. La méthode de production mettant en jeu le mécanisme réactionnel $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ a été retenue. Le désaccord entre les données de la littérature sur la fonction d'excitation de cette réaction a été résolu par une expérience. Cela permet d'estimer le taux de production d' ^{14}O en cible épaisse à $2,2 \times 10^{11}$ pps, pour un faisceau d' ^3He de 1 mA à 35 MeV. Une étude thermique réalisée sur la cible de production indique qu'il devrait être possible d'utiliser une intensité de faisceau primaire d' ^3He proche du mA potentiellement disponible. Le taux de production d' ^{14}O ainsi généré serait 140 fois plus élevé qu'avec SPIRAL 1. Cette étude thermique aura aussi permis de déterminer la géométrie de cible la plus favorable

et d'apporter les réponses nécessaires à la conception détaillée de cet ensemble de production.

Le principe de production des faisceaux d'ions radioactifs issus des fragments de fissions de la cible d'UCx a aussi été étudiée, et plus particulièrement les processus d'effusion et d'ionisation.

Concernant la production d'éléments alcalins, le but était de concevoir un système de production adapté aux spécificités de SPIRAL 2 et d'estimer les intensités de ces faisceaux. Une réflexion de fond sur l'ionisation de surface basée sur des éléments théoriques et des informations de la littérature a tout d'abord été menée. Cette étude préliminaire a été complétée par une campagne d'expériences avec le dispositif SISTHE (Source à Ionisation de Surface de Test Hors Exploitation). Une méthode, généralisable à toutes les sources d'ionisation de surface et présentant une grande souplesse d'utilisation, a été développée et mise en place pour mesurer des efficacités et des temps de réponses. Ainsi, nous avons pu mesurer le temps de réponse du tube ioniseur seul ainsi que le temps de résidence des alcalins sur le graphite en fonction de sa température. Dans le dernier chapitre, cette donnée a permis de prédire la vitesse de relâchement des alcalins en dehors de la cavité cible de SPIRAL 2. Enfin, l'évolution de l'efficacité d'ionisation en fonction du champ électrique dans le tube ioniseur, de la température et de la quantité d'alcalins à ioniser a été mesurée. Ces résultats ont permis de quantifier les avantages que présentent l'utilisation d'un tube en rhénium et d'un champ électrique élevé. L'étape suivante a consisté à concevoir le premier prototype de source à ionisation de surface (SIS) pour SPIRAL 2. Il a été couplé au four qui chauffe la cible de production pour effectuer une calibration thermique. Malgré un dysfonctionnement lors des tests, les résultats obtenus sont positifs : le principe du tube en rhénium, réalisé à partir de fines feuilles pliées puis soudées, a donné satisfaction.

Concernant la production de gaz nobles, le but était d'estimer l'impact qu'aura le processus d'effusion-ionisation sur l'efficacité totale de transformation des atomes radioactifs en ions. Pour cela, des mesures d'efficacité d'ionisation et de temps de réponse de l'ECS-ECR (*Electron Cyclotron Resonance*) ont été réalisées pour des isotopes stables de gaz nobles. La méthode expérimentale assurait des conditions de fonctionnement de l'ECS identiques pour rendre les résultats comparables. Ces tests ont permis de déterminer les actions correctives à mener pour optimiser le fonctionnement de l'ECS et de son environnement.

Les résultats obtenus, présentés dans le troisième chapitre, ont aussi permis de calculer l'efficacité du processus d'effusion pour différents isotopes radioactifs de gaz nobles. Dans le cas de la production d'ions alcalins, les fonctions de relâchement de l'ECS ont été estimées à partir de simulations avec le code RIBO [184] et des valeurs mesurées de temps de résidence des alcalins, présentées dans le second chapitre. L'efficacité du processus d'effusion pour les isotopes de différents alcalins en a été déduite moyennant l'hypothèse d'un temps de résidence identique sur l'UCx et le graphite. Enfin, l'efficacité de la SIS de SPIRAL 2 a été calculée ; elle devrait être proche de 100% dans les conditions de fonctionnement optimum de température et de champ électrique atteintes lors de la calibration de la source.

Perspectives

A court terme, les moyens qui seront mis en œuvre sur les différents systèmes de production étudiés ou mentionnés dans ce travail de thèse dépendent de l'intérêt exprimé par la communauté scientifique pour les différents faisceaux qui pourront être délivrés avec SPIRAL 2. L'état d'avancement de ces systèmes est variable. Une rapide revue des développements envisagés sur ces dispositifs est donnée ci-dessous.

La conception détaillée de l'ensemble de production d' ^{14}O est en cours au bureau d'étude du GANIL. Elle devrait aboutir sur la construction d'un premier prototype au courant du second semestre 2011. Parallèlement, des simulations thermiques plus détaillées prenant en compte l'environnement de la cible ainsi que sa géométrie exacte devront être effectuées. Le moyen de tester la tenue thermique de ce prototype, soumis à un dépôt de puissance équivalent à celui du faisceau de 1 mA d' ^3He à 35 MeV, reste à déterminer. Ce système de production pourra aussi être utilisé pour la production d' ^{15}O par la réaction $^{12}\text{C}(^4\text{He},n)^{15}\text{O}$. La fonction d'excitation de cette réaction a été mesurée uniquement pour des énergies inférieures à 22,7 MeV. Dans une gamme d'énergie plus élevée, la mesure de cette section efficace par méthode d'activation semble difficile pour ce noyau décroissant uniquement par β^+ et dont les rayonnements d'annihilation

(511 keV) ne pourront être distingués de ceux des autres produits de réaction (^{11}C et ^{13}N).

Il était initialement prévu d'effectuer fin 2010 des mesures de caractérisation de l'ECS-ECR à plus haute température (jusqu'à 2000°C) avec la version 5 du four. Les mesures présentées au chapitre 3 ayant montré une faible dépendance du temps de relâchement des gaz nobles avec la température de la cible, il semble possible dans un premier temps d'évaluer l'efficacité de relâchement à partir d'une extrapolation des résultats obtenus à plus basse température. Lorsque que le four permettra d'obtenir une température nominale de 2000°C, les tests de l'ECS-ECR reprendront pour vérifier la justesse de l'extrapolation et tester la fiabilité de son fonctionnement sur une durée de trois mois, durée de vie requise des ECS pour le projet SPIRAL 2.

Concernant la source à ionisation de surface, des modifications sont en cours, prenant en compte les résultats obtenus lors de la calibration thermique. Avec cette nouvelle version, une calibration thermique sera effectuée à plus haute température, le but étant d'atteindre 2500 K et un champ électrique dans le tube ioniseur de 1 V.cm⁻¹. A l'aide de la méthode développée avec le dispositif SISTHE, le temps de réponse de l'ECS-SIS à des impulsions d'alcalins sera mesuré. Ces valeurs pourront être comparées aux valeurs déterminées par des simulations dans le chapitre 4. L'efficacité de la SIS pourra aussi être mesurée et confrontée aux résultats du calcul Monte Carlo. Les mesures à effectuer pour tester l'ionisation laser dans la SIS restent encore à définir.

Un des objectifs de la présente thèse était d'améliorer l'estimation des intensités des faisceaux d'ions radioactifs de gaz et d'alcalins qui seront délivrés avec SPIRAL 2 en déterminant l'impact des processus d'effusion et d'ionisation sur la production de ces faisceaux. Pour parfaire l'estimation de ces intensités, il reste à déterminer l'impact du processus de diffusion dans la cible de production. De nombreuses données concernant la diffusion d'éléments en dehors d'une cible d'UCx existent dans la littérature. Néanmoins, elles ont été obtenues dans des conditions expérimentales très différentes et sont difficilement comparables. De plus, les dispositifs utilisés pour effectuer ces mesures sont partiellement inadaptés car ils sont souvent dédiés à la production de faisceaux radioactifs et pas uniquement à l'étude de la diffusion. A plus long terme, un travail de synthèse et une campagne de mesures effectuées dans des conditions identiques doivent être menés. Une collaboration entre le GANIL, ANL [220], ORNL, LLNL [221], TRIUMF, ISOLDE, IPNO, PNPI et INFN [222] se propose d'aller dans ce sens. Une expérience est d'ores et déjà prévue en Novembre 2010 à ISOLDE. Le

relâchement d'une cible d'UC de haute densité utilisée au PNPI à Gatchina sera mesuré dans les mêmes conditions que l'UCx utilisé à ISOLDE et à l'IPNO.

Annexe 1.1

Étude de cibles d'oxydes

Dans cette annexe, les différents oxydes utilisables pour fabriquer une cible de production pour le ^{15}C sont passés en revue. De cette liste sont exclus, les oxydes présentant un risque radiologique comme ThO_2 et UO_2 ou ceux dont la température de fusion est inférieure à 2000°C . Le tableau 13 présente les propriétés thermiques des oxydes retenus. Tous les oxydes cités dans le tableau sont disponibles chez le fournisseur American Elements [223] sous forme de poudre, de pastilles, de barreaux ou de pièces usinées. Les propriétés proviennent de la base de données du logiciel HSC Chemistry [224] et du fournisseur [223]. La gamme de température utile désigne les températures suffisamment élevées pour que la molécule CO soit formée mais inférieures à la température de dissociation de l'oxyde. Elle est obtenue à l'aide du logiciel HSC Chemistry [224] qui permet de calculer des diagrammes d'équilibres. Le calcul est effectué pour une pression dans la cavité cible de 10^{-4} mbar. Les conditions stœchiométriques initiales sont les suivantes : 1 kmol de matériau cible et 0,1 kmol de ^{15}C .

Les oxydes présentant la gamme de température utile la plus large et la plus élevée sont ZrO_2 et HfO_2 . De plus, ces oxydes étant couramment utilisés dans la production de faisceaux radioactifs, ils constituent de bons candidats pour réaliser la cible de production de ^{15}C .

Oxyde	Pression de vapeur saturante à 10^{-4} (°C)	Température fusion (°C)	Densité (g.cm ⁻³)	Gamme de température utile (K)
Al ₂ O ₃	1550	2054	4	1100-2000
La ₂ O ₃	1400	2305	6,5	1500-1700
Cr ₂ O ₃	2000	2330	5,2	900-1700
CeO ₂	2310	2400	7,6	700-2000
Dy ₂ O ₃	1400	2410	7,8	1500-2000
Ho ₂ O ₃		2420	8,4	1500-2100
Gd ₂ O ₃		2420	7,1	1600-2100
Yb ₂ O ₃	1500	2435	9,2	1200-2000
Sc ₂ O ₃		2485	3,9	1600-2200
SrO	1500	2530	5,1	1100-1750
BeO	1900	2580	3,0	1400-2000
ZrO ₂	2200	2677	5,7	1300-2200
Y ₂ O ₃	2000	2690	5,0	1600-2200
HfO ₂	2500	2780	9,7	1500-2300
MgO	1300	2830	3,6	1200-1700
CaO		2900	3,34	1200-1900

tableau 13 _ Liste des propriétés d'oxydes présentant une température d'utilisation élevée.

Annexe 1.2

Regroupement de plusieurs mesures

Cette annexe présente le détail de la démarche suivie dans le calcul du regroupement de plusieurs mesures dans la partie 4.3.4 du 1^{er} chapitre.

Après chaque irradiation, le comptage est effectué en plusieurs tranches (n sous-comptages) de 60 s. Les valeurs de section efficace obtenues pour chacun de ces comptages peuvent être regroupées. Pour cela, la section efficace est exprimée par le produit de deux termes : un terme constant X_C et un terme variable X_{V_i} en fonction des comptages i .

$$X_C = \left(I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot N_f \cdot \int_0^{t_{irr}} \Phi(\tau) \cdot e^{\lambda\tau} \cdot d\tau \right)^{-1} ; \quad X_{V_i} = \frac{N_{\gamma_i}}{TM_{-i}^{-1} \cdot e^{-\lambda(t_{irr} + t_{dep})} (1 - e^{-\lambda t_{acq}})_{-i}} \quad (48)$$

La valeur de la section efficace σ_r qui résulte du regroupement des valeurs obtenues pour les différents comptages i est exprimée dans la formule ci-dessous (49), l'erreur sur cette valeur est donnée par la somme quadratique de l'erreur sur le terme constant et de l'erreur de la moyenne sur les termes variables selon les taux de comptage (50).

$$\sigma_r = X_C \cdot X_{V_tot} \quad \text{avec}$$
$$X_{V_tot} = (\delta X_{V_tot})^2 \cdot \sum_{i=1}^n \frac{X_{V_i}}{(\delta X_{V_i})^2} \quad \text{et} \quad (\delta X_{V_tot})^{-2} = \sum_{i=1}^n (\delta X_{V_i})^{-2} \quad (49)$$

$$(\Delta \sigma_r)^2 = (\Delta X_{V_tot})^2 + (\Delta X_C)^2 \quad (50)$$

- **Feuilles de cobalt.**

Pour l'analyse des feuilles de cobalt, la section efficace de production de certains isotopes est déterminée à partir de deux rayonnements γ notés par l'indice j . Ces valeurs peuvent être regroupées. A partir des valeurs calculées précédemment, un nouveau regroupement, similaire au précédent, peut

s'appliquer. Une nouvelle définition des termes constant et variable, désormais notés Y_C et Y_{V_j} est introduite.

$$Y_C = \left(N_f \cdot \int_0^{t_{irr}} \Phi(\tau) \cdot e^{\lambda\tau} \cdot d\tau \right)^{-1} ; \quad Y_{V_j} = \frac{X_{V_tot_j}}{I_{\gamma_j} \cdot \varepsilon_{\gamma_j}} \quad (51)$$

$$(\Delta Y_{V_j})^2 = (\Delta X_{V_tot_j})^2 + (\Delta I_{\gamma_j})^2 \quad (52)$$

Le calcul du regroupement du terme variable et de son erreur présenté dans la formule (49) est général et peut être appliqué aux termes Y_{V_j} . Toutefois, dans le regroupement précédent, dans le calcul de l'erreur sur le terme X_{V_tot} de la formule, l'erreur sur les termes X_{V_i} doit prendre en compte uniquement l'erreur sur le nombre d'événements dans le pic δN_{γ_i} . En effet, nous avons vu dans la partie 4.3.3.6 du 1^{er} chapitre que l'erreur sur le terme lié à la décroissance peut être négligée pour l'analyse des feuilles de cobalt. L'erreur sur le temps mort est majorée à 1% et elle est prise en compte dans l'erreur sur le terme constant, afin de ne pas être moyennée deux fois successives.

● Feuilles d'aluminium et de carbone.

Pour les isotopes produits dans les feuilles d'aluminium et de carbone, l'analyse est effectuée pour un seul rayonnement γ . Pour chaque énergie du faisceau primaire, l'assemblage cible subit deux irradiations successives notées avec un indice k. Les valeurs de la section efficace déduites à partir de ces deux irradiations peuvent être regroupées. De nouveaux termes constant et variable Z_C et Z_{V_k} sont définis (53) pour effectuer ce nouveau regroupement. Le terme lié au flux du faisceau primaire Φ passe du terme constant au terme variable. La formule (49) peut alors être directement appliquée.

$$Z_C = (N_f \cdot I_{\gamma} \cdot \varepsilon_{\gamma})^{-1} ; \quad Z_{V_k} = \frac{X_{v_tot_k}}{\int_0^{t_{irr}} \Phi(\tau) \cdot e^{\lambda\tau} \cdot d\tau_{-k}} \quad (53)$$

Annexe 1.3

Propriétés des graphites testés

Cette annexe présente en détails, les propriétés des différents graphites que nous envisageons d'utiliser. Elle fait référence à la partie 4.4.1.3 du 1^{er} chapitre.

Trois types de feuille de graphite ont été testés :

- graphite flexible « grafoil » GT B d'épaisseur 125 μm
- graphite POCO EDM 3 d'épaisseur 125 μm
- graphite POCO AXF-5Q d'épaisseur 100 μm

Les deux premiers types de graphite sont fournis par Goodfellow [122] et le graphite POCO AXF par Carbone Lorraine [188]. Les propriétés physiques et thermiques de ces matériaux sont présentées dans les tableaux ci dessous. La structure du graphite flexible est constituée d'une superposition de fines couches. Par conséquent, certaines de ses propriétés sont anisotropes.

Propriétés à température ambiante		Grafoil GT B	POCO EDM 3
Densité (g.cm^{-3})		0,9-1,3	1,8
Coefficient d'expansion thermique (10^{-6} K^{-1})	Transverse au plan	1	7
	Parallèle au plan	25	
Résistivité électrique ($\mu\Omega.\text{cm}$)	Transverse au plan	1000	1200
	Parallèle au plan	50000	
Conductivité thermique ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) à 20°C	Transverse au plan	4	150
	Parallèle au plan	160	
Résistance à la flexion (MPa)		-	90

tableau 14 _ Propriétés de différents types de graphite fournies par Goodfellow [122].

Propriétés à température ambiante	POCO EDM 3	POCO AXF-5Q
Densité	-	1,78
Taille des pores (μm)	-	0,8
Porosité totale (%)	-	20
Taille des grains (μm)	< 5	5
Résistivité électrique (μΩ.cm)	1560	1470
Résistance à la flexion (MPa)	91,5	86

tableau 15_ Propriétés de différents types de graphite fournies par POCO [225].

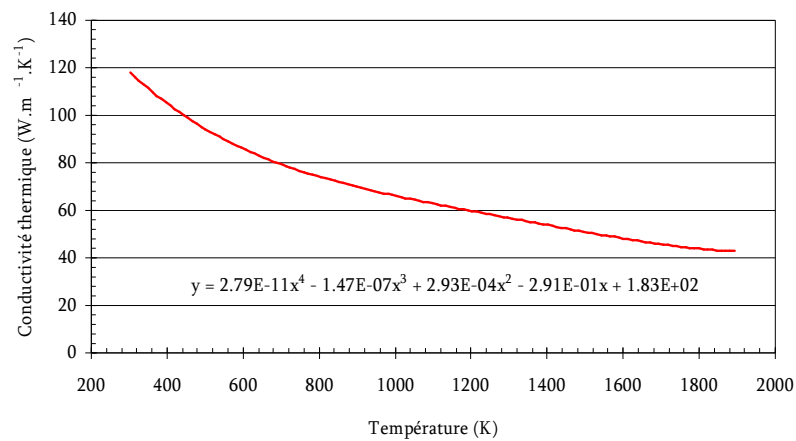


Fig. 113 _Evolution de la conductivité thermique du graphite POCO en fonction de la température.

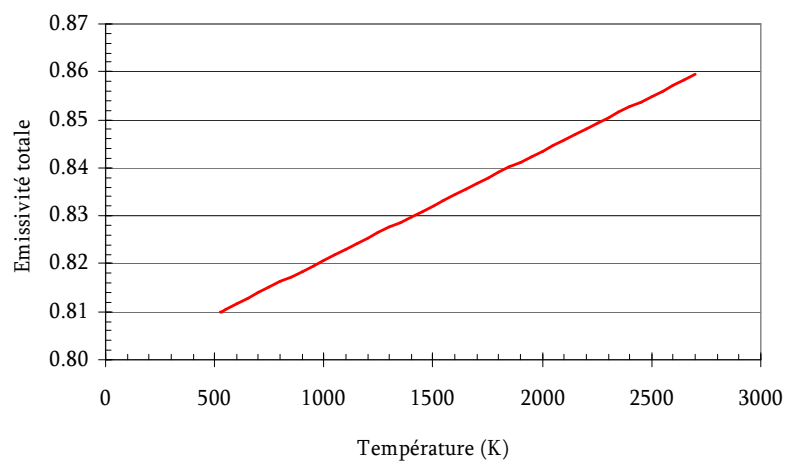


Fig. 114 _Evolution de l'émissivité totale du graphite POCO en fonction de la température.

Propriétés à température ambiante		Grafoil GT B
Densité (g.cm ⁻³)		1.12
Coefficient d'expansion thermique (10 ⁻⁶ K ⁻¹)	Transverse au plan de 20 à 1100°C	-0,4
	Transverse au plan de 1100 à 2200°C	0,9
	Parallèle au plan de 20 à 2200°C	27
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹) à 20°C	Transverse au plan	5
	Parallèle au plan	140
Emissivité		0,5

tableau 16_ Propriétés de différents types de graphite fournies par Gasketing [226].

Annexe 1.4

Etalonnage des pyromètres

Il faut indiquer au pyromètre la valeur de l'émissivité du matériau sur lequel la mesure est réalisée. Des courbes d'étalonnage sont réalisées (Fig. 115) pour chacun des pyromètres afin de mesurer l'évolution de la température donnée par les appareils avec l'émissivité. La température est systématiquement normalisée à la température correspondant à une émissivité de 0,6. L'indépendance des courbes en fonction du type de cible est expérimentalement vérifiée. Les mesures sont faites avec des protons de 1 MeV arrêtés dans 125 μm de graphite rigide ou flexible. Les courbes d'étalonnage sont différentes pour les deux pyromètres car ils ne sont pas adaptés à la même gamme de température. L'évolution de l'émissivité des graphites utilisés n'est pas parfaitement connue à haute température. Ces étalonnages permettent d'estimer l'erreur commise sur la mesure de la température des cibles :

- Pour le pyromètre 2, une incertitude sur l'émissivité de $\pm 0,1$ conduit à une erreur de $\pm 4\%$ sur la température pour $\varepsilon = 0,8$ et $\pm 6\%$ pour $\varepsilon = 0,6$.
- Pour le pyromètre 3, une incertitude sur l'émissivité de $\pm 0,1$ conduit à une erreur de $\pm 1\%$ sur la température pour $\varepsilon = 0,8$ et $\pm 2\%$ pour $\varepsilon = 0,6$.

Etant donné la faible influence de l'émissivité sur la mesure de température, l'émissivité du graphite rigide sera fixée à 0,8 et celle du graphite flexible à 0,5.

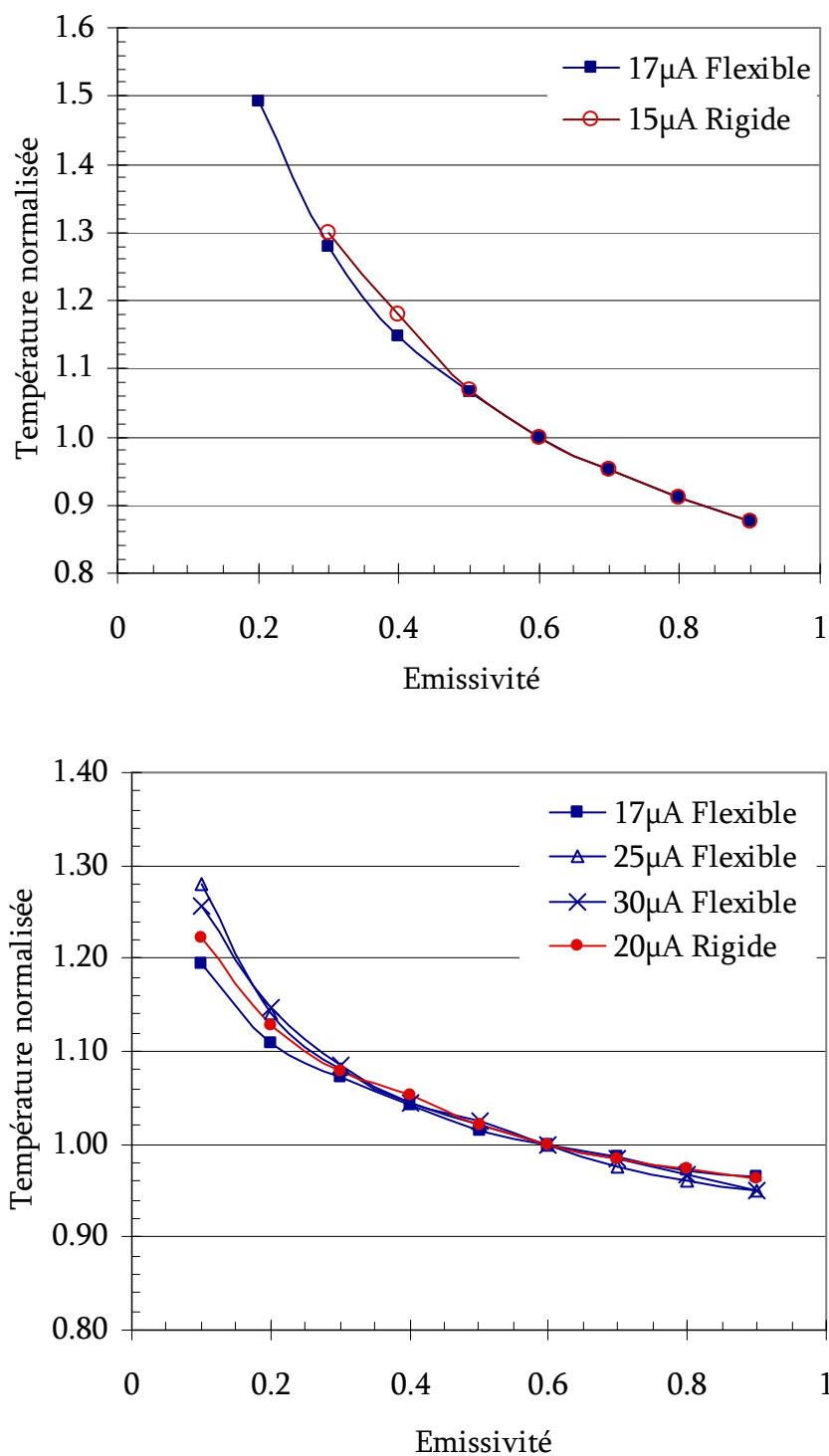


Fig. 115 _ Variation de la température en fonction de l'émissivité du pyromètre 2 (graphique du haut) et du pyromètre 3 (graphique du bas). La température est systématiquement normalisée à la température correspondant à une émissivité de 0,6.

Annexe 1.5

Validation du code COMSOL

Cette annexe présente la première étape des simulations thermiques effectuées avec le logiciel COMSOL Multiphysics. Elle consiste à valider l'utilisation du code sur un cas connu pour lequel l'accord entre la simulation et la mesure expérimentale est bon. Ce travail s'appuie sur l'étude thermique des cibles pour la fusion-évaporation menée par l'équipe du CENBG (FP7 tache 7.2). Les simulations thermiques d'une cible de nickel, effectuées par le CENBG [139] à l'aide du logiciel SAMCEF Bacon, reproduisent à 10% près leurs résultats expérimentaux. La comparaison des résultats des simulations des deux logiciels permet de valider l'utilisation de COMSOL.

- **Géométrie et propriétés.**

Dans la simulation, la géométrie (voir Fig. 116) est décomposée en trois parties : l'enceinte de refroidissement en cuivre, le support de cible en céramique (macor) et la cible de nickel. La cible présente un diamètre de 5 cm pour une épaisseur de 100 μm . A l'endroit où le circuit d'eau refroidit l'enceinte en cuivre, un coefficient d'échange par convection ($h = 10^5 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-2}$) avec de l'eau à 20 °C est défini. Les faces internes du support de l'enceinte et les deux faces de la cible échangent un flux de chaleur par rayonnement mutuel.

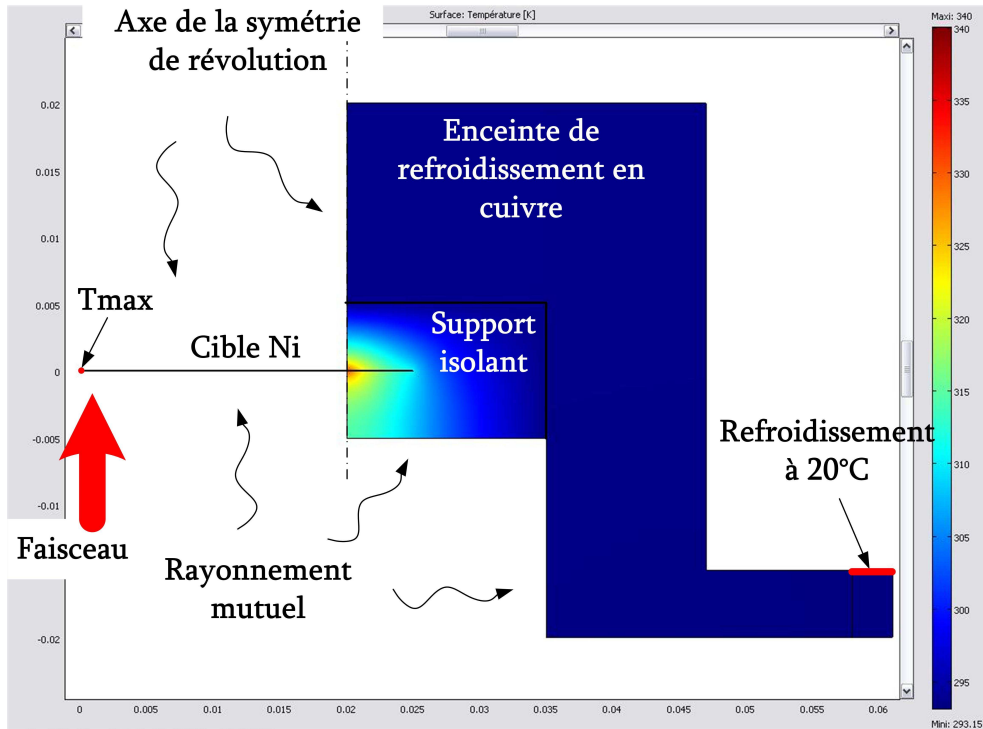


Fig. 116 _ Exemple de simulation thermique réalisée avec la cible de nickel.

Les propriétés des matériaux (conductivité thermique k , capacité calorifique C_p , densité d et émissivité ϵ) utilisées pour le calcul sont présentées dans le tableau 17. La conductivité du nickel dépend de la température. Cette dépendance est prise en compte dans la simulation, tableau 17 présente les valeurs correspondant à la température ambiante et à 1000 K.

Matériau	k (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	C_p (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	d (kg.m ⁻³)	ϵ
Nickel	68 à 300 K	444	8900	0,3
	77,5 à 1000 K			
Macor	1,46	790	2520	0,95
Cuivre	397	389	8960	0,1

tableau 17 _ Propriétés des matériaux utilisées dans la simulation.

Le calcul est réalisé pour un faisceau de protons de 3 MeV, soit un parcours dans le nickel de 32,9 μm . Le faisceau est supposé de forme parabolique de rayon 1,7 mm. Le dépôt de puissance se fait donc dans la cible dans un cylindre de rayon 1,7 mm et de hauteur 32,9 μm . Au sein de ce cylindre, le dépôt de puissance est discrétisé en 16 cellules afin de rendre compte des inhomogénéités dues à la forme du faisceau et au pic de Bragg (Fig. 117).

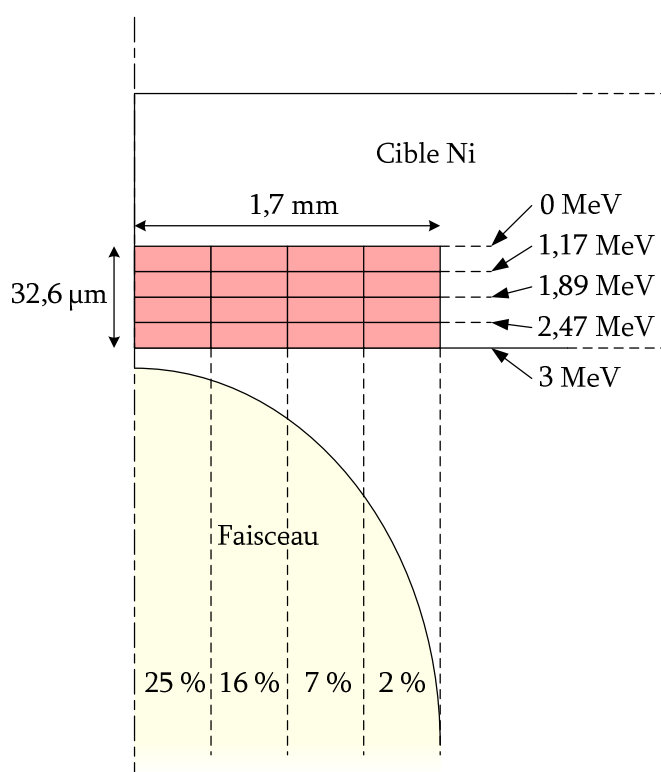


Fig. 117_ Schéma présentant le découpage de la cible de Ni adopté afin de rendre compte des inhomogénéités dues à la forme du faisceau et au pic de Bragg.

● Résultats.

Le tableau 18 présente une comparaison des températures maximales de la cible de nickel obtenues avec le logiciel COMSOL Multiphysics et SAMEF Bacon. Les résultats sont très proches.

Intensité du faisceau (µA)	T (K) donnée par SAMEF Bacon	T (K) donnée par COMSOL Multiphysics
5	1462	1441
4	1268	1248
3	1051	1044

tableau 18 _ Comparaison des résultats obtenus à partir des simulations SAMEF et COMSOL.

Les profils de températures issus des simulations COMSOL et présentés ci-dessous (Fig. 118) confirment ce résultat. En effet, ils sont en accord avec ceux calculés à l'aide de SAMEF. Le profil de température n'a pas été mesuré expérimentalement.

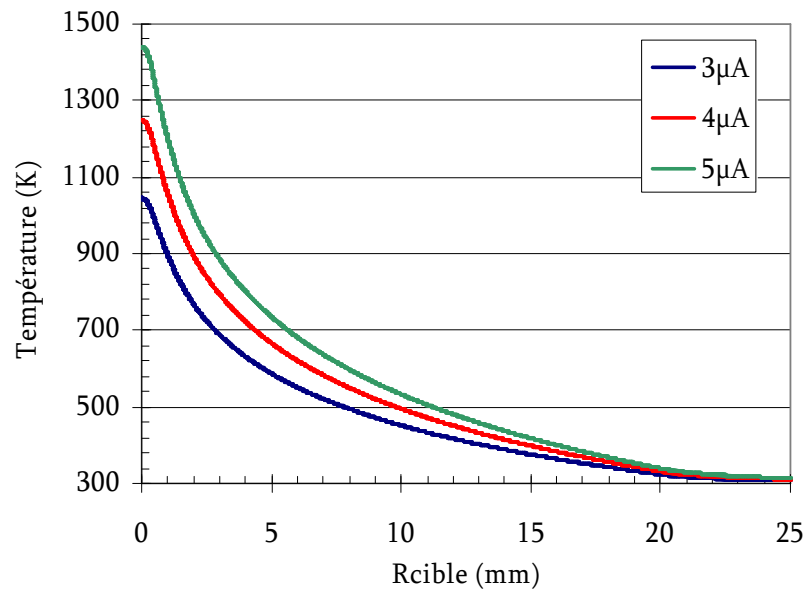


Fig. 118_ Allure du profil de température le long du rayon de la cible.

Cette première phase de l'étude démontre que le logiciel COMSOL Multiphysics est approprié pour effectuer ce type de simulation. Le temps de calcul reste faible (≈ 1 minute) pour cette géométrie où le nombre de surfaces rayonnantes est limité.

Annexe 2.1

Description du tube ioniseur d'une source à extraction électrostatique à l'aide d'un code Monte Carlo

Présentation du code

Cette annexe décrit le programme Monte Carlo qui a été conçu pour rendre compte de l'histoire d'un atome dans le tube d'une source à ionisation de surface à extraction électrostatique. A partir de paramètres d'entrée sur la nature et géométrie du tube et des caractéristiques des atomes injectés, il permet d'accéder à de nombreux résultats. Ainsi, il est possible de connaître la proportion d'ions et d'atomes qui sortent du tube par chacune de ses extrémités, le temps de vol et le nombre de collisions dans le tube (sous forme ionique ou atomique) et le lieu de leur dernière collision. De nombreux calculs ont été réalisés avec ce code. Les résultats sont consignés dans le tableau 11 et le tableau 20. Un code similaire a été développé à l'IPNO [164].

Au cours du calcul, le nombre N d'atomes qui détermine la précision du résultat et le temps de calcul est fixé. Un certain nombre de paramètres initiaux sont définis, ceux-ci sont liés :

- au tube ioniseur : le rayon (R_{tube}) et la longueur du tube (L_{tube}), sa température (T) et la différence de potentiel entre l'entrée et la sortie (U). Le travail de sortie de l'électron (Φ)
- à l'alcalin : la masse (m), le potentiel de 1^{er} ionisation (I)

Deux types de conditions initiales sont envisagés :

- **C1.** Pour décrire le cas où les alcalins parviennent dans le tube ioniseur en effusant depuis une cavité située à l'entrée du tube ioniseur. Les alcalins sont répartis uniformément sur le disque qui constitue la section d'entrée du tube

ioniseur. Ils sont considérés neutres et leur direction est tirée de manière uniforme dans la demi-sphère dirigée vers la sortie du tube ioniseur.

- **C2.** Pour décrire le cas où les alcalins sont implantés directement dans le tube ioniseur (à l'aide d'un canon à ion par exemple), la position initiale des alcalins est répartie uniformément sur toute la longueur du tube.

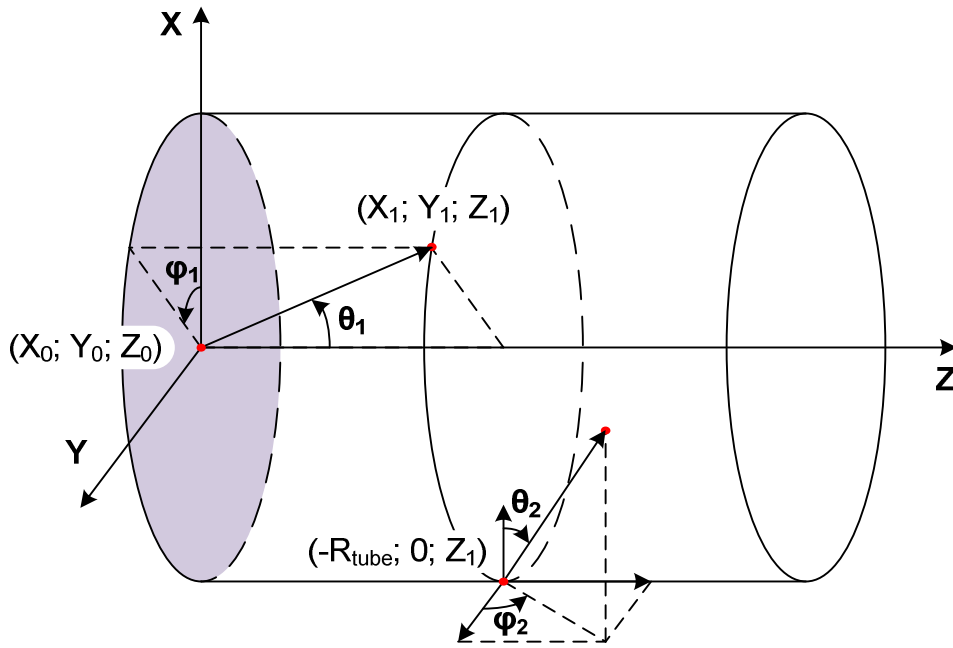


Fig. 119 _ Schéma du repère utilisé dans le tube ioniseur.

Pour la première condition initiale (C1), la position initiale de l'atome (X_0, Y_0) est tirée aléatoirement sur le disque d'entrée du tube ($Z_0 = 0, X_0^2 + Y_0^2 < R_{\text{tube}}^2$). L'angle φ_1 (entre les axes X et Y) est tiré de manière uniforme entre 0 et 2π et $\cos \theta_1$ entre 0 et 1 (angle entre les axes Z et P). Ce tirage permet d'avoir une répartition uniforme de la direction initiale dans la demi-sphère dirigée selon l'axe Z. A partir de ces angles, le vecteur unitaire \mathbf{P} suivant est défini :

$$\mathbf{P} = \begin{pmatrix} P_x = \sin \theta_1 \cdot \cos \varphi_1 \\ P_y = \sin \theta_1 \cdot \sin \varphi_1 \\ P_z = \cos \theta_1 \end{pmatrix} \quad (54)$$

Les coordonnées de la première collision sont calculées à partir du système d'équations suivant :

$$\begin{cases} X_1 = \alpha \cdot P_X + X_0 \\ Y_1 = \alpha \cdot P_Y + Y_0 \\ X_1^2 + Y_1^2 = R_{tube}^2 \\ Z_1 = \alpha \cdot P_Z + Z_0 \end{cases} \quad (55)$$

Le coefficient α représente la longueur parcourue avant la collision suivante. Ce système se simplifie en équation du second degré en α . Sa résolution donne les nouvelles coordonnées de l'alcalin. Après ce calcul, et afin de simplifier la suite de la démarche, on considère que les nouvelles coordonnées seront les suivantes $(-R_{tube} ; 0 ; Z_1)$. Un test est effectué sur sa coordonnée Z_1 pour savoir si l'alcalin est sorti du tube. Si c'est le cas, un compteur indiquant que l'atome est sorti sans effectuer de collisions est incrémenté et en fin de calcul, la probabilité qu'un atome sorte sans effectuer de collisions sera calculée. Il est aussi possible d'estimer cette probabilité par le rapport de l'angle solide que représente l'orifice de sortie vu depuis l'entrée du tube, sur l'angle solide total d'émissions des atomes. La comparaison de ces deux probabilités permet de contrôler ces résultats.

Si l'atome se trouve toujours dans le tube, on se ramène au cas de la seconde condition initiale (C2), c'est-à-dire avec un atome implanté quelque part le long du tube. Seule la répartition des atomes diffère. Toute la démarche qui suit sera donc commune aux deux conditions. Elle constitue une boucle qui sera répétée jusqu'à ce que l'alcalin sorte du tube.

De nouveaux angles φ_2 (angle entre les axes Y et Z) et θ_2 (angle entre les axes X et Z) sont tirés. Le tirage aléatoire de l'angle φ_2 entre 0 et 2π est répété. Pour le tirage de l'angle θ_2 , la loi de Knudsen-Lambert [227] est utilisée. La fonction de distribution utilisée pour tirer l'angle θ_2 vaut $(\cos \theta_2)/\pi$. Les alcalins sont thermalisés à chaque collision. Il est considéré que la norme de la vitesse d'émission v est reliée à sa masse m et sa température T par la fonction de Maxwell-Boltzmann. La loi de distribution de vitesse utilisée est donc la suivante :

$$\frac{dn}{dv} = 2 \cdot v^2 \cdot \sqrt{\frac{m^3}{2\pi \cdot (k_B T)^3}} \cdot e^{-\frac{mv^2}{2k_B T}} \quad (56)$$

Le tirage suivant permet de déterminer si l'alcalin devient ion ou atome suite à la collision. Selon le résultat du tirage la valeur de la charge q est fixée à 0 ou 1. La probabilité de devenir ion suite à un contact est donnée par la loi de Langmuir (57). Elle peut être calculée à partir des paramètres d'entrée fournis ou tout simplement fixée par l'utilisateur.

$$P_+ = \frac{1}{1 + 2 \cdot e^{\frac{I-\Phi}{k_B T}}} \quad (57)$$

A partir de ces données initiales, la nouvelle coordonnée de l'alcalin est calculée. Le vecteur unitaire \mathbf{Q} est utilisé dans la démarche suivante :

$$\mathbf{Q} = \begin{cases} Q_X = \cos \theta \\ Q_Y = \sin \theta \cdot \cos \varphi \\ Q_Z = \sin \theta \cdot \sin \varphi \end{cases} \quad (58)$$

Tout comme précédemment, on résout le système suivant afin de déterminer le coefficient α .

$$\begin{cases} X_1 = \alpha \cdot Q_X + X_0 \\ Y_1 = \alpha \cdot Q_Y + Y_0 \\ X_1^2 + Y_1^2 = R_{tube}^2 \end{cases} \quad (59)$$

Puisque l'alcalin peut être ion ou atome après le contact, il faut prendre en compte la contribution du champ électrique dans le tube ioniseur pour le calcul de la coordonnée selon l'axe Z.

Remarque : Il convient de noter ici que, dans sa version actuelle, le code considère un champ électrique uniforme le long du tube. Cela ne permet pas de rendre compte de l'effet d'une électrode d'extraction polarisée placée à la sortie du tube. Des modifications sur ce code sont envisageables afin de rendre compte de cet effet.

La nouvelle coordonnée Z_1 est calculée à partir de l'équation suivante :

$$Z_1 = \frac{qU}{mL_{tube}} \tau_v^2 + \alpha \cdot Q_Z + Z_0 \quad (60)$$

$$\tau_v = \alpha / v$$

τ_v représente le temps de vol entre deux collisions.

Ces calculs sont répétés jusqu'à ce que l'alcalin sorte du tube ioniseur. Au cours de la boucle et lorsque l'alcalin sort du tube ioniseur, plusieurs compteurs sont incrémentés. Ils permettent de remplir des histogrammes afin de visualiser les résultats. Les paramètres observés sont :

Le temps de vol et le nombre de collisions effectuées si l'on sort par la sortie du tube ioniseur (hn_col_out) ou son entrée (hn_col_lost) (les cas où l'élément sort sous forme d'ion ou d'atome peuvent être distingués).

Le lieu de la dernière collision (coordonné Z) avant la sortie du tube ioniseur par son entrée (hz_last_col_lost) ou sa sortie (hz_last_col_out).

Le lieu de toutes les collisions effectuées dans le tube (hz_col).

Validation du code pour des cas limites

Des calculs ont été effectués dans des conditions limites et ont permis de valider le code dans des cas simples. Les calculs ont été effectués avec les paramètres suivants :

Rayon du tube : 2 mm

Longueur : 30 mm de long

Température : 2000 K

Différence de potentiel électrique : 2 V

La masse des atomes n'est pas spécifiée ici car les trajectoires sont indépendantes de la masse.

Condition initiale 1, $P_+ = 0$. Les alcalins effusent depuis la section d'entrée du tube. Tout les alcalins restent sous forme d'atome puisque $P_+ = 0$.

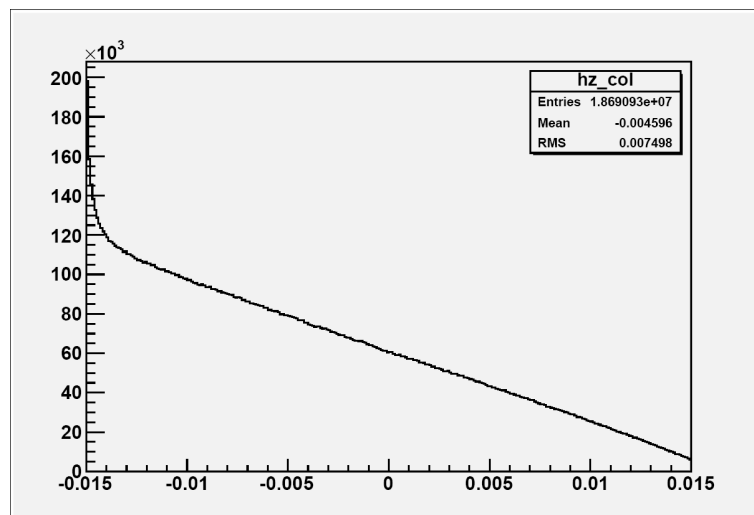


Fig. 120 _ Histogramme représentant le nombre de collisions à la surface du tube en fonction de la position Z selon l'axe du tube (on remarquera que le centre du tube correspond à l'abscisse 0).

Il apparaît qu'un nombre important de collisions ont lieu dans le premier mm du tube. Elles correspondent à la première collision de chaque atome. En effet, dans le cas d'une effusion à partir de l'entrée du tube, le tirage de la direction

d'émission est effectué de manière isotrope dans la demi-sphère orientée vers la sortie du tube. Cela signifie que les angles θ_1 proche de $\pi/2$ sont les plus probables.

Le nombre de collisions diminue lorsque l'on se rapproche de la sortie du tube car la longueur de tube en aval diminue. Le nombre d'atomes pouvant provenir de cette zone diminue lui aussi.

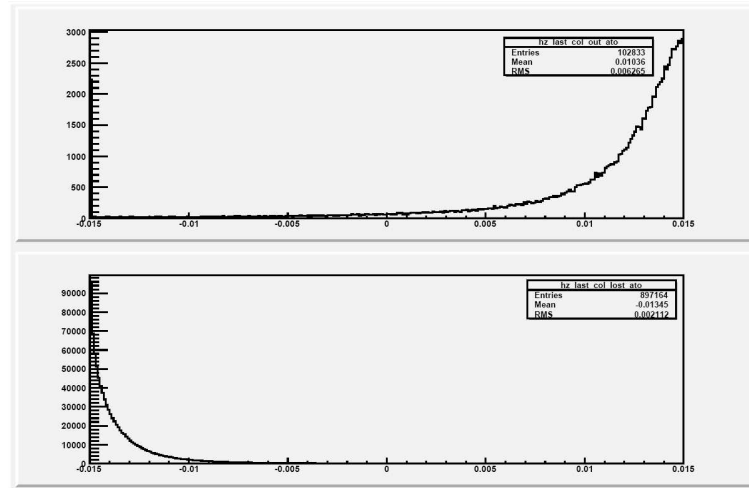


Fig. 121 _ Histogrammes représentant le lieu de la dernière collision avant que l'alcalin sorte vers la sortie (*hz_last_col_out*, histogramme du haut) ou vers l'entrée du tube (*hz_last_col_lost*, histogramme du bas).

Le nombre d'atomes sortant vers la sortie est faible. Ce n'est pas la voie favorisée car l'entrée du tube constitue le point de départ des atomes.

Pour les atomes sortant vers la sortie, la position de la dernière collision se situe en moyenne à 5 mm de l'orifice de sortie. Pour ceux qui sortent par l'entrée du tube, elle se situe à 1,5 mm de l'orifice d'entrée. Cette différence s'explique par la condition initiale : les atomes effusent depuis l'entrée du tube (condition C1). Il sera montré plus loin que dans le cas d'une implantation homogène le long du tube (condition C2), les deux histogrammes présentés précédemment deviennent symétriques (Fig. 124).

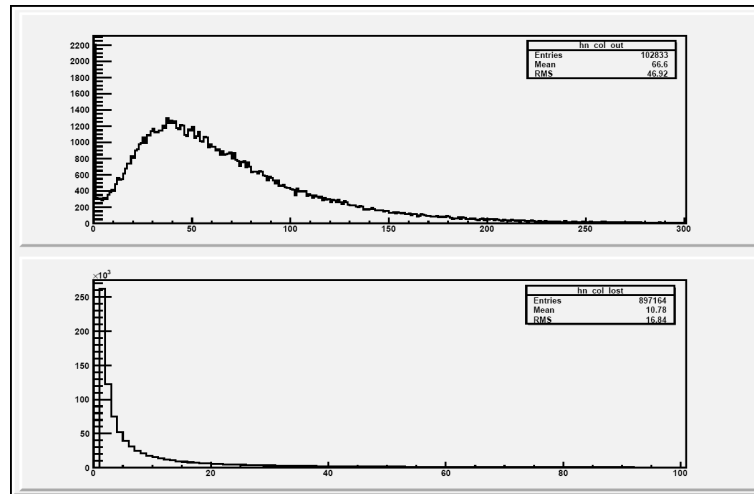


Fig. 122 _ Histogrammes représentant le nombre de collisions effectuées avant que l'alcalin sorte vers la sortie (hn_col_out) ou vers l'entrée du tube (hn_col_lost).

Pour les atomes qui sortent vers la sortie, environ 2% d'entre eux sortent sans avoir effectué de collisions (la première barre de l'histogramme du haut Fig. 122 correspondant à 0 collision, vaut 2200 pour un nombre d'événements totaux de 102833). Ce sont les atomes qui passent directement au travers du tube et dont la direction initiale a été tirée dans l'angle solide que constitue l'orifice de sortie du tube. Les alcalins sortants par l'entrée effectuent en moyenne 11 collisions alors que ceux sortant vers la sortie effectuent en moyenne 67 collisions.

Condition initiale 2, $P_+ = 0$. L'implantation initiale des atomes est uniforme sur la surface du tube et la probabilité d'ionisation par contact est nulle.

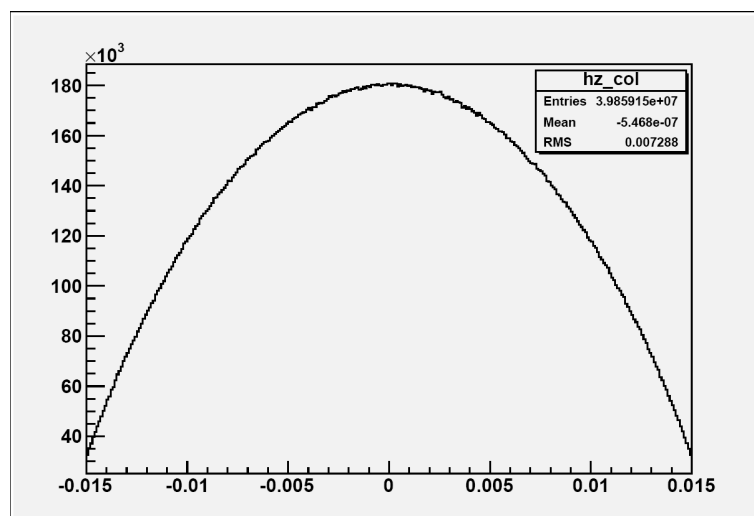


Fig. 123 _ Histogramme représentant le lieu des collisions au cours de la vie de l'alcalin.

Dans le cas de la condition 2, il est normal que le lieu des collisions présente une symétrie par rapport au centre du tube. En effet, les alcalins sont implantés de manière uniforme le long du tube et se déplacent en effusant sans ressentir le champ électrique ($P_+ = 0$). Ils effusent donc de façon identique vers les deux orifices du tube.

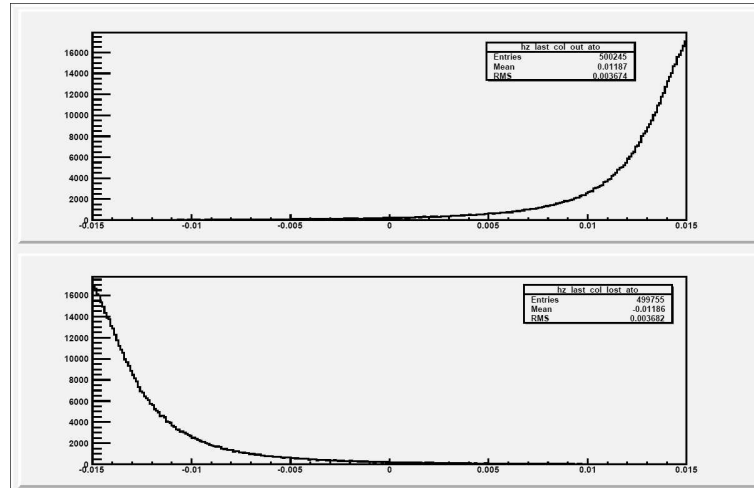


Fig. 124 _ Histogrammes représentant le lieu de la dernière collision avant que l'alcalin sorte vers la sortie (*hz_last_col_out*) ou vers l'entrée du tube (*hz_last_col_lost*).

La position de la dernière collision dans le tube présente aussi une symétrie par rapport au centre du tube. Quelle que soit la voie de sortie du tube, les alcalins proviennent de la même profondeur (en moyenne à 3 mm de l'orifice de sortie).

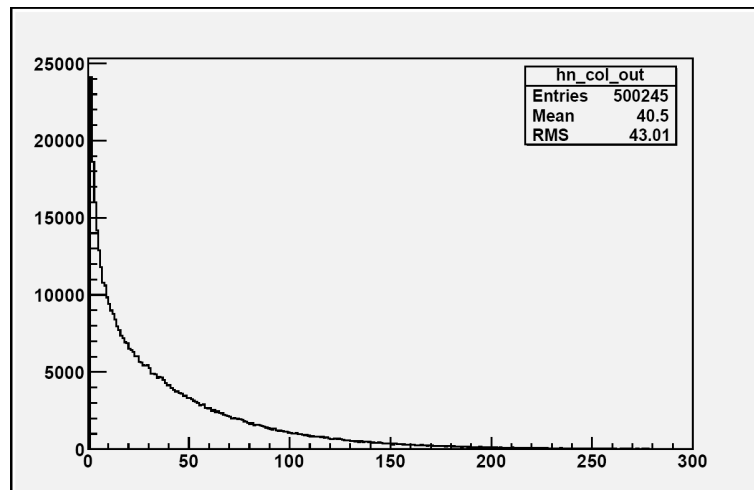


Fig. 125 _ Histogramme représentant le nombre de collisions effectuées avant que l'alcalin sorte vers la sortie (*hn_col_out*).

Seul l'histogramme des alcalins sortis vers la sortie figure ici car celui de ceux sortis par l'entrée est identique (là encore effet de symétrie). Le nombre moyen de collisions effectué est de 40,5, il est logique de trouver moins de collisions que pour la condition 1 (66,6) où les alcalins proviennent tous de l'entrée du tube.

Ces calculs ont été effectués avec une probabilité d'ionisation par contact nulle. Les mêmes résultats sont obtenus en imposant P_+ quelconque et un champ électrique nul. Seule la proportion d'ions et d'atomes change.

- **Condition 1, $P_+ = 1$.** Les atomes sont émis à l'entrée du tube, sont ionisés au premier contact avec la paroi du tube et accélérés vers la sortie par le champ électrique.

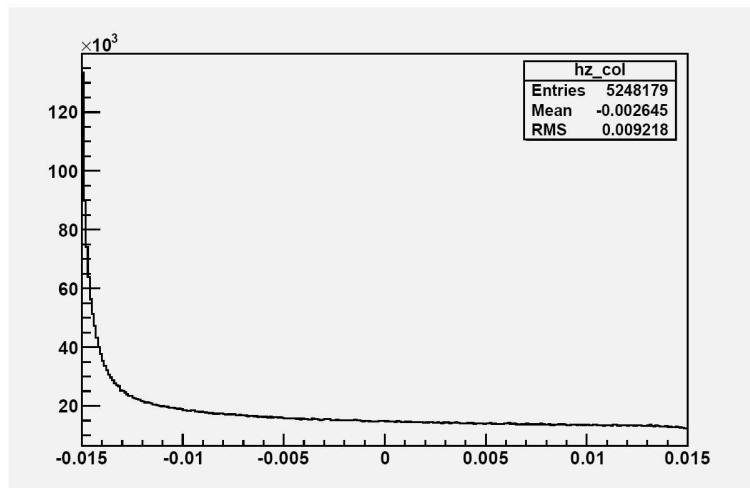


Fig. 126_ Histogramme représentant le lieu des collisions au cours de la vie de l'alcalin.

Le nombre important de collisions à l'entrée du tube est dû à la condition initiale. Suite au premier contact, la probabilité de contact à une position Z devient quasiment uniforme. L'allure est donc différente du cas où $P_+ = 0$ (Fig. 120) car dans ce dernier cas, la possibilité de retour des atomes conduit à l'établissement d'un gradient entre le point de départ et la sortie du tube. L'entraînement des ions vers la sortie annule ce gradient, et conduit simplement à l'écoulement d'un courant, quasi identique le long du tube.

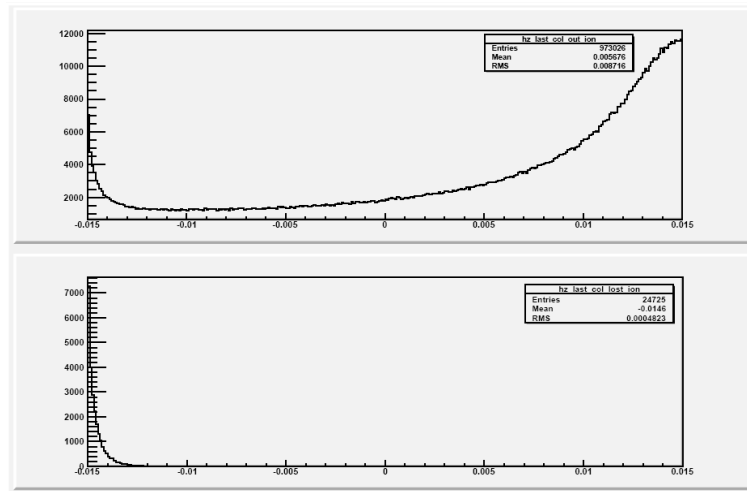


Fig. 127 _ Histogrammes représentant le lieu de la dernière collision avant que l'alcalin sorte vers la sortie (hz_last_col_out) ou vers l'entrée du tube (hz_last_col_lost).

Ici encore, l'effet du champ électrique est clair, les ions sortant vers la sortie proviennent de plus profond dans le tube (en moyenne à 9,3 mm de l'orifice de sortie). Une partie importante des dernières collisions a aussi lieu en début de tube car c'est là que l'on a le plus de collisions (cf. histogramme précédent). Grâce au champ électrique, le nombre d'ions sortant par la sortie est 40 fois plus important que ceux sortant par l'entrée.

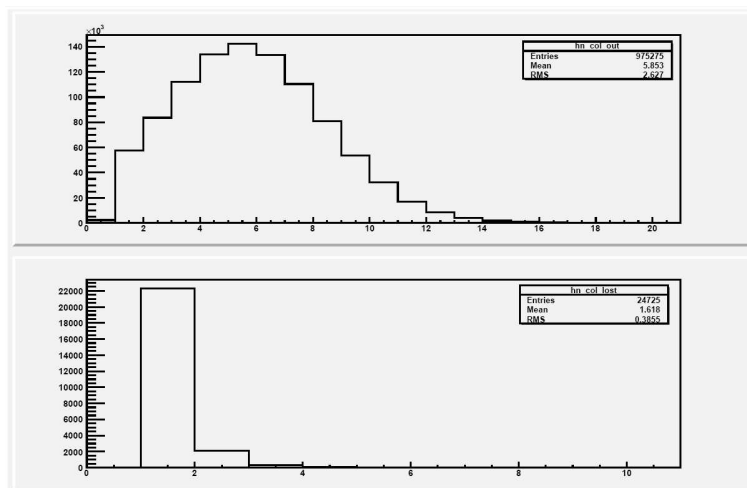


Fig. 128 _ Histogrammes représentant le nombre de collisions effectuées avant que l'alcalin sorte vers la sortie (hn_col_out) ou vers l'entrée du tube (hn_col_lost).

Le nombre de collisions est fortement diminué grâce à l'effet du champ électrique, les ions ne font plus en moyenne que 5,8 collisions.

- **Condition 2, $P_+ = 1$.** Les atomes sont implantés uniformément à la surface du tube, sont ionisés au premier contact avec la paroi du tube et accélérés vers la sortie par le champ électrique.

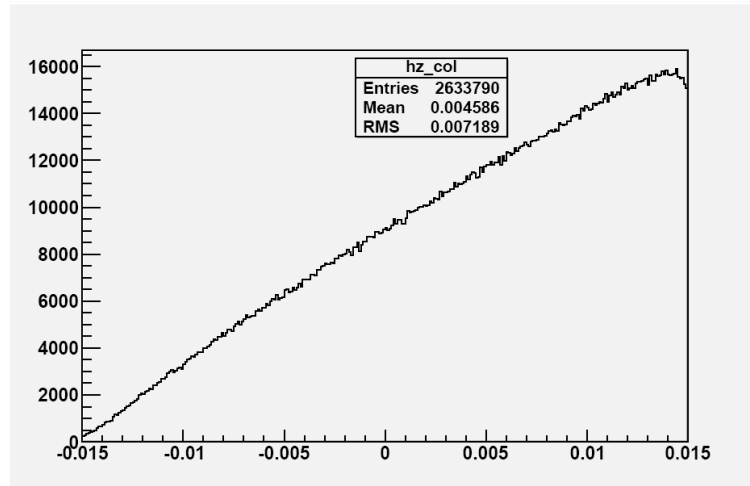


Fig. 129_ Histogramme représentant le lieu des collisions au cours de la vie de l'alcalin..

L'effet de symétrie observé dans la condition C2 et avec $P_+ = 0$ disparaît, le champ électrique induit plus de collisions en fin de tube.

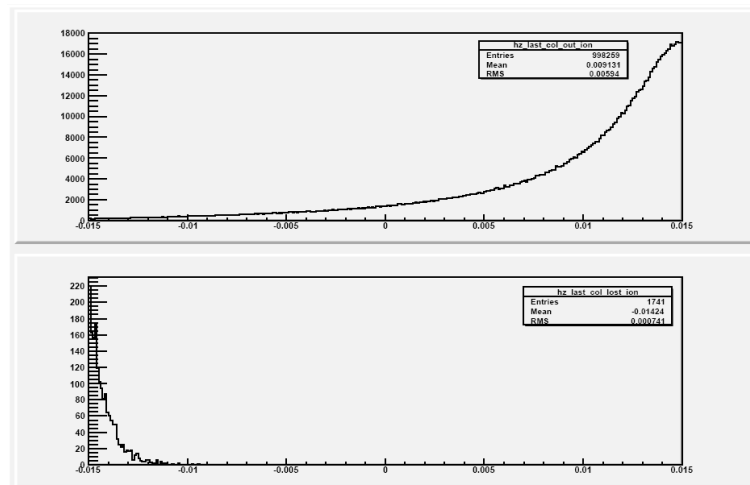


Fig. 130_ Histogrammes représentant le lieu de la dernière collision avant que l'alcalin sorte vers la sortie (hz_last_col_out) ou vers l'entrée du tube (hz_last_col_lost).

La distribution du lieu de la dernière collision est relativement similaire à celle observée avec la condition initiale 1.

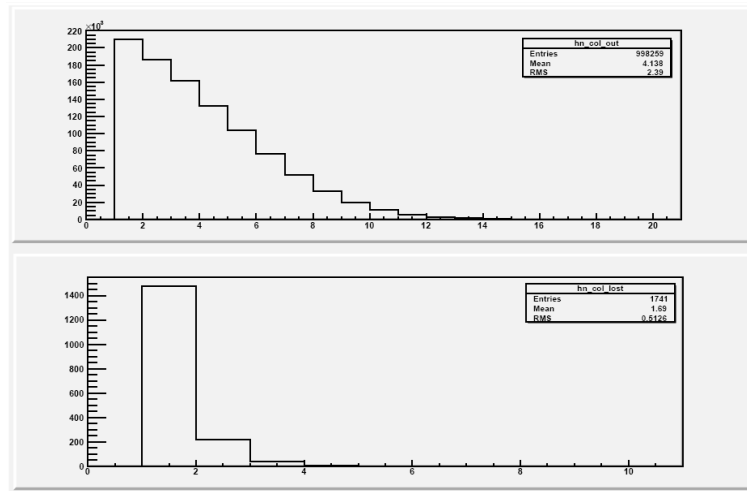


Fig. 131 _ Histogrammes représentant le nombre de collisions effectuées avant que l'alcalin sorte vers la sortie (hn_col_out) ou vers l'entrée du tube (hn_col_lost).

Dans le cas d'une répartition uniforme d'atomes à la surface du tube, on observe donc que le nombre de collisions effectuées dans le tube avant que l'alcalin sorte vers la sortie est inférieur au nombre de collisions effectuées dans le tube lorsque les atomes sont injectés à partir de la surface d'entrée du tube. Toutefois cet écart est faible ; le nombre de collisions moyen passe de 5,8 (condition 1) à 4,1 (condition 2).

Résultats

Le graphique (Fig. 132) montre un exemple de résultat qu'il est possible d'obtenir avec ce code. Il présente l'évolution de l'efficacité d'ionisation du tube en fonction de la probabilité d'ionisation par contact P_+ pour différentes valeurs de champ électrique. Ces calculs ont été réalisés pour une géométrie de tube ioniseur relativement standard et correspondant au tube de SISTHE (voir partie 3), c'est à dire pour un tube de 3 cm de long et de 4 mm de diamètre. Les atomes sont injectés à l'entrée du tube.

L'efficacité d'ionisation du tube est calculée par le rapport du nombre d'ions en sortie du tube sur le nombre d'atomes injectés dans le tube. Les efficacités minimum et maximum qu'il est possible de calculer correspondent aux cas suivants :

- Cas 1 : Les éléments injectés dans le tube qui **sortent par l'entrée** du tube sont perdus. L'efficacité d'ionisation est minimale. Ce cas correspond à un tube seul, sans possibilité de retour des atomes, ou à un tube relié à une cavité cible pour des atomes de durée de vie suffisamment courte pour que leur probabilité de retour dans le tube après effusion dans la cavité soit négligeable.

• Cas 2 : Tous les éléments injectés dans le tube **sortent par la sortie** du tube. L'efficacité est maximale. Ce cas correspond à un tube relié à une cavité cible fermée pour des éléments stables.

Dans le cas de SISTHE, le tube est connecté à une cavité partiellement ouverte. Chaque élément présent dans la cavité a donc une probabilité inférieure à 1 d'atteindre l'entrée du tube ioniseur. Nous avons donc choisi de présenter sur le graphique ci-dessous (Fig. 47) les valeurs d'efficacité minimales.

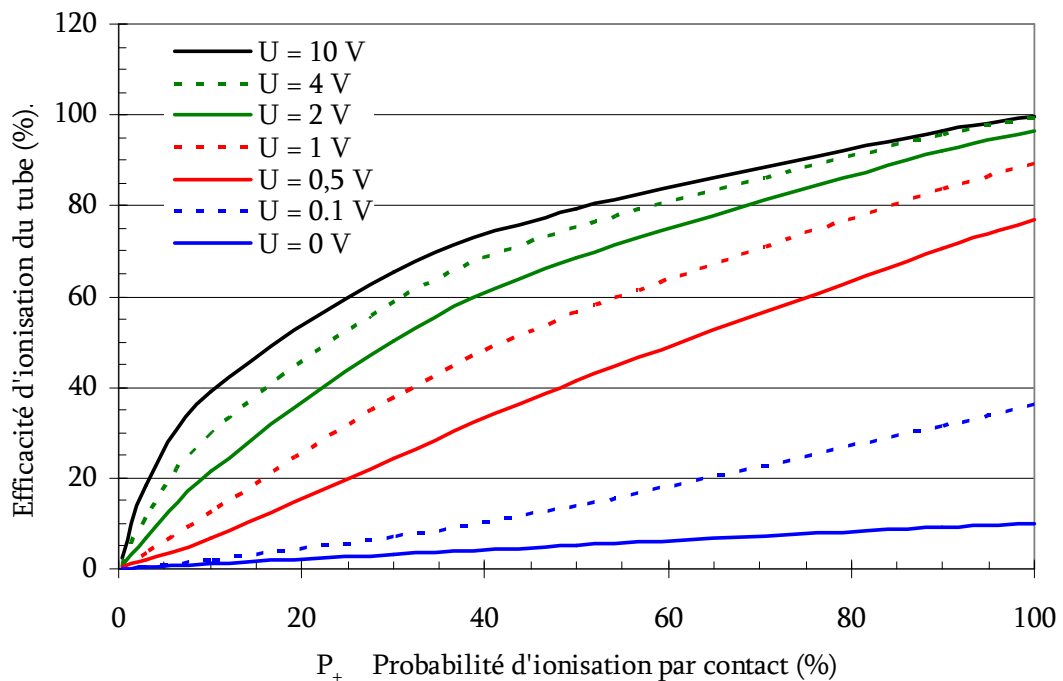


Fig. 132 _ Evolution de l'efficacité d'ionisation du tube en fonction de la probabilité d'ionisation par contact pour différentes valeurs de champ électrique. Ces calculs ont été réalisés pour un tube de 3 cm de long et de 4 mm de diamètre.

Les deux tableaux ci-dessous présentent toutes les données de sortie obtenues à l'aide du code pour quelques calculs. Ils ont été effectués avec la même géométrie de tube que les calculs précédents et avec une statistique de 10^7 atomes.

Avec la condition initiale 1.

P+ (%)	U (V)	Z col (mm)	Z last col ion out (mm)	Z last col ion lost (mm)	Ncol out	Ncol lost	Ncol out ion	Ncol lost ion	Eff ion out (%)	Eff ion lost (%)	Eff ato out (%)	Eff ato lost (%)
100	2	-2,5	6,1	-14,6	5,8	1,1	5,8	1,1	96,6	3,1	0,2	0
90	2	-2,5	6	-14,6	6,8	1,3	6,8	1,2	92,2	3	1,3	3,6
50	2	-2,6	5,6	-14,5	10,6	2,1	10,4	1,6	68,5	2	6,7	22,8
30	2	-2,7	5,1	-14,5	16	3	15,5	2,2	50,2	1,4	10,2	38,3
10	2	-3,3	3,8	-14,4	33	6,3	30,7	4,3	21,4	0,6	13,2	64,8
3	2	-4	2,6	-14,4	51,2	10,3	44,8	7,1	6,7	0,2	12,2	81
0,3	2	-4,5	1,6	-14,4	64,4	12,9	52	8,4	0,6	0	10,5	88,8
100	3	-3,1	4,6	-14,7	4,4	1	4,4	1	98,5	1,3	0,2	0
90	3	-3	4,6	-14,7	4,8	1,2	4,8	1,1	94,5	1,2	1	3,3
50	3	-3,1	4,2	-14,6	8	1,8	7,9	1,4	73	0,8	5,1	21
30	3	-3,2	3,8	-14,6	12,2	2,6	11,9	1,9	55,9	0,5	8,1	35,4
10	3	-3,5	2,8	-14,6	26,7	5,3	25	3,4	26,7	0,2	11,7	61,4
3	3	-4	1,7	-14,5	45,6	9,4	40	5,7	9,3	0,1	11,7	78,9
0,3	3	-4,5	0,8	-14,5	63,4	12,8	50,5	6,7	0,9	0	10,6	88,6
100	4	-3,5	3,4	-14,7	3,6	1	3,6	1	99,2	0,6	0,2	0
90	4	-3,5	3,4	-14,7	4	1,4	4	1	95,5	0,5	0,9	3,1
50	4	-3,5	3,1	-14,7	4,2	1,7	4,1	1,4	75,4	0,4	4,2	20
30	4	-3,5	2,8	-14,7	10,1	2,3	9,9	1,7	59,1	0,2	6,8	33,9
10	4	-3,8	1,9	-14,6	22,8	4,8	21,4	3	30,3	0,1	10,4	59,2
3	4	-4,1	0,9	-14,6	41,5	8,7	36,5	5,1	11,4	0	11,2	77,4
0,3	4	-4,6	0,1	-14,6	62,3	12,6	48,7	5	1,2	0	10,4	88,4

tableau 19_ Résultats du code pour un tube de 2 mm de rayon et de 3 cm de long dans la condition 1.

Avec

P+ : probabilité d'ionisation par contact.

U : champ électrique dans le tube

Z last col ion out : position moyenne de la dernière collision avant que les ions quittent le tube par la sortie.

Z last col ion lost : position moyenne de la dernière collision avant que les ions quittent le tube par son entrée.

Ncol out : nombre moyen de collisions effectuées avant de sortir par la sortie du tube.

Ncol lost : nombre moyen de collisions effectuées avant de sortir par l'entrée du tube.

Ncol out ion : nombre moyen de collisions effectuées avant que les ions quittent le tube par la sortie.

Ncol lost ion : nombre moyen de collisions effectuées avant que les ions quittent le tube par son entrée.

Eff ion out : probabilité de quitter le tube sous forme d'ion par la sortie.

Eff ion lost : probabilité de quitter le tube sous forme d'ion par l'entrée.

Eff ato out : probabilité de quitter le tube sous forme d'atome par la sortie.

Eff ato lost : probabilité de quitter le tube sous forme d'atome par l'entrée.

Zinit ion out : position moyenne de la première collision avant que les ions quittent le tube par la sortie.

Zinit ion lost : position moyenne de la première collision avant que les ions quittent le tube par l'entrée.

Zinit ato out : position moyenne de la première collision avant que les atomes quittent le tube par la sortie.

Zinit ion lost : position moyenne de la première collision avant que les atomes quittent le tube par l'entrée.

Avec la condition 2.

P+ (%)	U (V)	Z col (mm)	Z last col ion out (mm)	Z last col ion lost (mm)	Zinit ion out (mm)	Zinit ion lost (mm)	Zinit ato out (mm)	Zinit ato lost (mm)	Ncol out	Ncol lost	Eff ion out (%)	Eff ion lost (%)	Eff ato out (%)	Eff ato lost (%)
100	2	4,6	9,2	-14,2	0	-14,2	-	-	3,7	1,2	99,8	0,2	0	0
90	2	4,4	9,1	-14,2	0	-14,1	2,3	-12,6	4,1	1,5	98	0,2	1,5	0,4
50	2	3,5	8,7	-14,2	0,1	-13,3	2,4	-11,8	7	3	86,2	0,2	10,5	3,1
30	2	2,9	8,2	-14,2	0,3	-12,3	2,5	-10,8	10,8	5,3	74,1	0,1	19,2	6,5
10	2	1,6	7,1	-14,1	0,9	-9,5	3,1	-8	23	16	44,5	0,1	36,5	19
3	2	0,6	6,2	-14,1	1,5	-6,9	3,8	-5,8	34,6	30,2	18,1	0,1	46,4	35,5
0,3	2	0	5,7	-14,1	2	-5,5	4,3	-4,5	40	39,4	2,1	0	49,7	48,2
100	3	4,7	8,4	-14,4	0	-14,4	-	-	3	1	99,9	0,1	0	0
90	3	4,5	8	-14,4	0	-14,3	2,8	-12,7	3,2	1,4	98,5	0,1	1,1	0,3
50	3	3,45	7,9	-14,4	0	-13,6	2,9	-11,9	5,4	2,5	89	0,1	8,2	2,7
30	3	2,8	7,5	-14,4	0	-12,7	3	-11,1	8,5	4,3	78,9	0	15,4	5,6
10	3	1,7	6,5	-14,3	0,6	-10,2	3,3	-8,5	19	13	52	0	31,6	16,3
3	3	0,7	5,5	-14,3	1,3	-7,6	3,8	-6,1	32	27	23,7	0	43,7	32,6
0,3	3	0	4,9	-14,4	1,7	-6,2	4,3	-4,6	40	39	2,9	0	49,4	47,7
100	4	4,9	7,6	-14,6	0	-14,6	-	-	2,4	1	100	0	0	0
90	4	4,5	7,6	-14,6	0	-14,5	3,3	-12,8	2,7	1,3	98,7	0	0,9	0,3
50	4	3,4	7,2	-14,5	0	-13,8	3,3	-12	4,6	2,3	90,6	0	6,9	2,5
30	4	2,8	6,9	-14,5	0	-13	3,3	-11,3	7,2	3,8	81,6	0	13,2	5,2
10	4	1,7	5,9	-14,5	0,6	-10,4	3,6	-8,8	16,8	11,3	56,8	0	28,3	15
3	4	0,7	5	-14,5	1,1	-7,6	3,9	-6,3	30	25	27,8	0	41,4	30,8
0,3	4	0	4,3	-14,5	1,5	-6,4	4,3	-4,6	41,7	41,4	3,6	0	49,1	47,3

tableau 20_ Résultats du code pour un tube de 2 mm de rayon et de 3 cm de long dans la condition 2.

Annexe 2.2

Matériaux candidats pour la source à ionisation de surface

Le but de cette annexe est d'étudier différents matériaux susceptibles d'être utilisés pour le tube ioniseur et le tube de transfert de la source à ionisation de surface de SPIRAL 2. Plusieurs caractéristiques pour le matériau constituant le tube ioniseur et le tube de transfert sont fondamentales pour un fonctionnement optimal. Parmi celles-ci nous pouvons citer la tenue à haute température (matériaux réfractaires), un travail de sortie des électrons élevé, une faible réactivité avec les polluants attendus et une résistivité électrique élevée.

Tenue thermique et influence des polluants

Cette partie propose une étude de l'influence que peuvent avoir différents polluants sur les propriétés des matériaux pouvant constituer le tube de transfert et le tube ioniseur. Dans ce cadre, seuls les matériaux présentant une température de fusion à 10^{-5} mbar supérieure à 1500 K sont considérés. Ainsi sont exclus le titane, le chrome, le fer, le cobalt, le nickel, le cuivre et le palladium, matériaux pouvant pourtant conduire à une grande probabilité d'ionisation par contact. La réactivité chimique des matériaux : carbone, zirconium, niobium, molybdène, rhodium, ruthénium, tantale, tungstène, rhénium, osmium, iridium et platine a été étudiée en présence des différents polluants : hydrogène, carbone, azote, oxygène et uranium. Les graphiques présentés ci-dessous sont issus de calculs menés à l'aide du logiciel de chimie HSC Chemistry 5.11 [224]. Ils présentent l'évolution de la composition du système « matériau ionisant + polluant » dans les phases condensées et gazeuses (symbole « g ») en fonction de la température à laquelle l'équilibre est calculé. Ils ne concernent que les matériaux carbone et rhénium. L'étude complète a fait l'objet d'un document EDMS [228]. Sur l'axe des ordonnées est représenté le logarithme en base 10 de la quantité en moles. Pour 1 mole de matériau ionisant, on introduit 10^{-3} moles de polluant (gaz désorbés par exemple). Ce rapport entre la quantité de matériaux ionisant et de polluants est

fixé arbitrairement : il permet simplement d'apprécier le taux de réaction. Par exemple, sur le graphique (Fig. 133), en bas à gauche, on remarque qu'à partir d'une température de 600 K, 100% des atomes d'oxygène introduits en présence d'une mole de carbone auront réagi avec le carbone pour donner lieu à des molécules gazeuses de CO. Le calcul d'équilibre est effectué pour notre système à une pression totale constante de 10^{-5} mbar. Cette pression de vapeur à l'équilibre est celle due à la somme des pressions partielles des éléments considérés. La pression est un paramètre important car elle fixe la température de transition entre phase condensée et phase gazeuse des matériaux. Ainsi, à la pression atmosphérique, le carbone présente une température de fusion proche de 4100 K. Ceci signifie qu'à cette température, la phase condensée du carbone est à l'équilibre avec sa phase vapeur à 1 bar. A l'équilibre à une pression de 10^{-5} mbar, la température de fusion tombe à environ 2200 K. Cette diminution très importante de la température de fusion doit être prise en compte lors de la conception des dispositifs.

Ces calculs permettent donc de comprendre quelles sont les molécules formées en fonction de la température ainsi que la répartition des matériaux entre phases.

Graphite

Le graphite est une des formes allotropiques du carbone les plus abondantes. Ce matériau réfractaire peut atteindre des températures de 2200 K sous vide. Néanmoins en présence d'oxygène il s'oxyde entre 620 et 720°C et s'évapore sous forme CO et CO₂. C'est un matériau très rigide et cassant craignant chocs et vibrations.

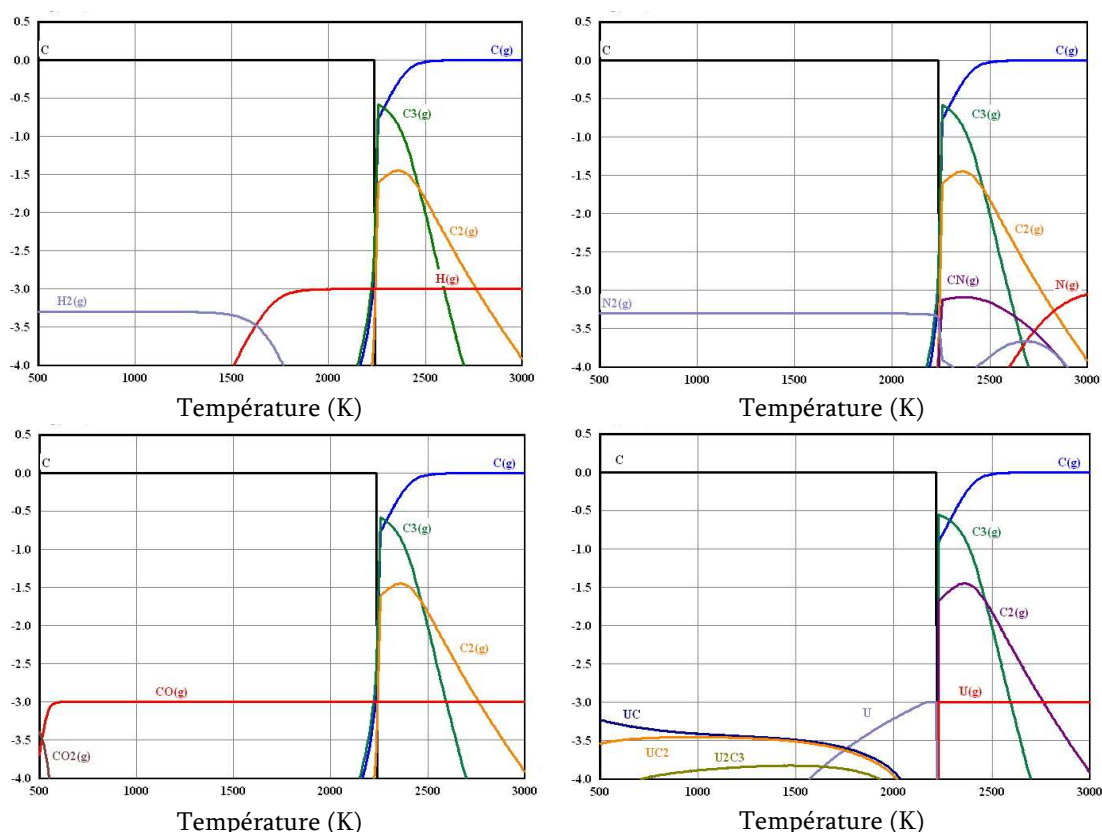


Fig. 133 _ Diagrammes d'équilibre du carbone en présence de polluants (H, N, O et U) pour une pression de 10^{-5} mbar.

La chute abrupte de la phase condensée du carbone signifie qu'à partir d'une température d'environ 2200 K, tout le carbone passe en phase gazeuse. Les températures plus élevées qui peuvent être atteintes aux cours des expériences sont dues aux conditions de pressions partielles de carbone au voisinage des pièces en carbone qui sont plus élevées que 10^{-5} mbar. Au voisinage de 2200 K, une augmentation d'un facteur 10 de la pression partielle entraîne une augmentation de plus de 100 K de la température de fusion. Ce calcul montre donc que lors de la conception des dispositifs portés à haute température, il est important que l'environnement immédiat des pièces portées à haute température (écrans) soit de même nature pour qu'un recyclage de matière puisse être assuré et ainsi que leur espérance de vie s'en trouve allongée.

Les différents polluants ont une influence sur l'équilibre entre phase du carbone au travers des réactions qu'ils peuvent avoir avec le carbone. Par exemple, pour une température supérieure à 500 K, les molécules $\text{CO}_{(\text{gaz})}$ et UC_x sont formées. Par conséquent, il faut éviter la présence d'oxygène dans le système afin d'éviter la réduction de la pièce en carbone par oxydation puis pompage du gaz CO. Dans le cas de l'uranium provenant de la cible de production en UC_x , celui-ci peut coller sur des parois en carbone. Le tableau 21 montre que l' UC_x

présente un travail de sortie plus faible que le carbone. Il est donc probable qu'un dépôt d'uranium sur une surface de carbone diminue la probabilité d'ionisation par contact des alcalins. Il faudra donc limiter la température de la cible pour limiter la pression partielle d'uranium et ainsi la pollution d'un tube ioniseur en carbone.

Après avoir calculé les réactions entre deux composés chimiques, une seconde étape a consisté à recalculer le système avec tous les polluants qui ont une influence (dans ce cas l'oxygène et l'uranium, Fig. 134). On constate par rapport à la Fig. 133 bas gauche que la présence d'uranium limite la formation de gaz CO à basse température.

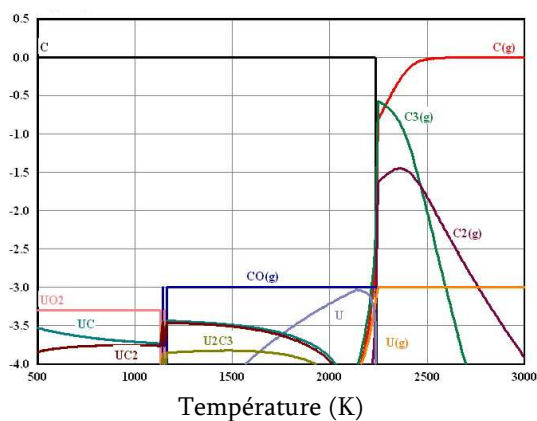


Fig. 134 _ Diagramme d'équilibre du carbone en présence d'uranium et d'oxygène pour une pression de 10^{-5} mbar.

Rhénium

Ce métal à haute température de fusion 3461 K est très ductile. Il ne présente pas de transition ductile-cassante (contrairement au tantale et tungstène). Il est ainsi plus résistant aux chocs thermiques. Le rhénium réagit avec les alcalins à température ambiante. Toutefois, la quantité d'alcalins produite dans la cible d' UC_x sera très faible en comparaison de la quantité de matériau ionisant, et le tube ioniseur sera porté à haute température, évitant ainsi l'accumulation d'alcalins.

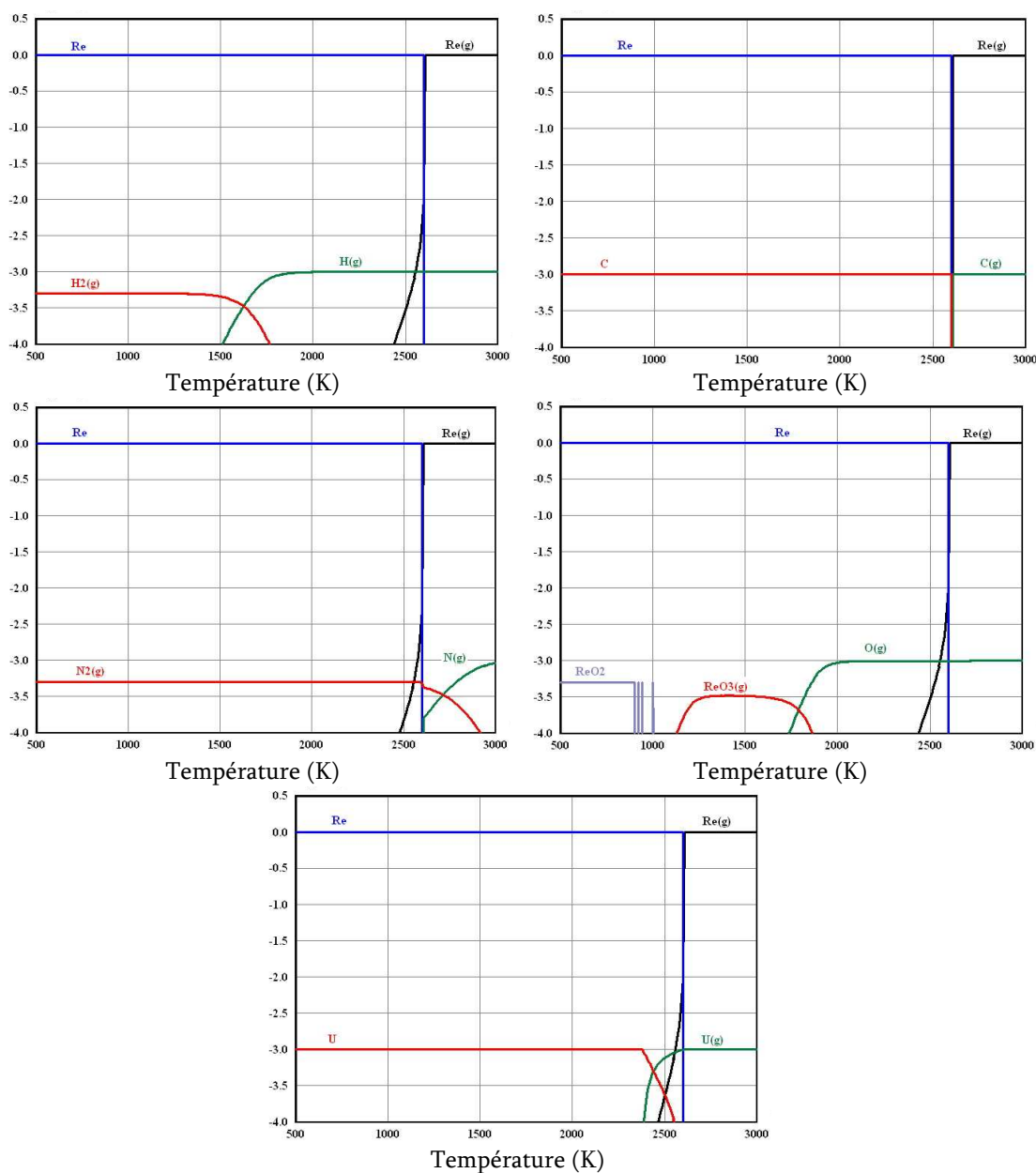


Fig. 135 _ Diagrammes d'équilibre du rhénium en présence de divers polluants pour une pression de 10^{-5} mbar.

La pression de vapeur du rhénium est de 10^{-5} mbar à 2600 K et de 10^{-6} mbar à 2400 K. Il forme en présence d'oxygène des oxydes gazeux entre 1100 et 1850 K.

Sa température de fusion, inférieure à celle des électrodes en tungstène utilisées dans les systèmes de soudure TIG, permet l'utilisation de cette technique de soudure relativement répandue.

De tous les polluants, l'oxygène semble être le plus gênant. Il conduit la plupart du temps à la formation d'oxydes gazeux conduisant à la destruction des matériaux. De plus, la carburation en surface de plusieurs matériaux peut être gênante pour les matériaux constituant le tube ioniseur car cela diminue généralement le travail de sortie de l'électron. Il faudra donc veiller à ce que le dégazage de la chambre à vide renfermant le système d'ionisation de surface soit fait à basse température pour limiter le taux de réaction chimique et pendant une période suffisamment longue pour minimiser la présence d'oxygène sous forme O_2 ou H_2O .

Travail de sortie des électrons

Le matériau ionisant joue un rôle crucial dans le phénomène d'ionisation de surface. On rappelle que la probabilité d'ionisation par contact est donnée par l'équation de Langmuir (voir l'équation (28) dans la partie 2.1.1 du 1^{er} chapitre). Le travail de sortie doit être le plus élevé possible pour favoriser cette probabilité. Le tableau 21, dont les données sont extraites des références [229-231], présente quelques matériaux ayant un travail de sortie élevé. Le travail de sortie est fortement dépendant des propriétés de surface du matériau; les valeurs données ci-dessous correspondent à une surface poly-cristalline propre et à température ambiante. D'autres types de matériaux présentant un travail de sortie de l'électron élevé ne sont pas présentés ici. Il s'agit des oxydes de métaux réfractaires [155,156], leurs utilisations n'étant pas compatible avec le flux de carbone en provenance de la cible de production. Certaines surfaces monocristallines [232] présentent aussi un travail de sortie de l'électron élevé, toutefois, il est difficile d'en obtenir de grandes surfaces et elles ne sont pas compatibles avec un fonctionnement à haute température.

Matériau	Travail de sortie, Φ (eV)		
	Smi-83 [229]	Lid-04 [230]	Car-08 [231]
Carbone	4,5 - 5	5	
Carbure d'Uranium	2,9	-	
Titane	3,9	4,33	4,17
Carbure de Titane	3,35	-	
Chrome	3,9	4,5	
Fer α	4,5	4,67	
Cobalt	4,41	5,0	
Nickel	4,61	4,74	
Cuivre	4,41	4,76	
Zirconium	4,12	4,05	4,10
Carbure de Zirconium	2,18	-	
Niobium	4,19	4,3	4,01
Molybdène	4,15	4,6	3,9
Ruthénium	-	4,71	4,71
Rhodium	4,8	4,98	4,98
Palladium	4,9	5,22	5,12
Tantale	4,25	4,25	4,12
Carbure de Tantale	3,14	-	
Tungstène	4,54	4,55	4,4
Rhénium	4,96	4,72	
Osmium	5,93	5,93	4,83
Iridium	5,27	5,6	5,27
Platine	5,32	5,64	5,65

tableau 21 _ Valeur du travail de sortie de l'électron en eV pour différents matériaux.

Dans les cas connus, le travail de sortie de l'électron de quelques métaux carburés a été ajouté. Dans ces cas, Φ du métal carburé est inférieur à celui du métal pur et à celui du carbone.

Résistivité électrique

La loi de Langmuir (28) démontre également que le phénomène d'ionisation sera favorisé par de hautes températures. De plus, des températures élevées permettent de limiter le temps de résidence des alcalins sur les parois. Le tube ioniseur ou de transfert d'une source à ionisation de surface peut être chauffé par effet Joule. Par exemple, sur SISTHE (Source à Ionisation de Surface de Test Hors Exploitation), un courant de 125 A circule dans le tube ioniseur en carbone portant celui-ci à 2000 K. Le passage de ce fort courant crée une différence de potentiel de quelques volts aux bornes du tube qui aide à extraire les ions plus rapidement. Plus la résistivité du matériau sera élevée plus la différence de potentiel U permettant d'extraire les ions sera grande.

$$U = I \cdot \rho \cdot \frac{l}{S} \quad (61)$$

S représente la section de passage du courant dans le matériau considéré, l sa longueur et ρ sa résistivité électrique. La résistivité électrique d'un matériau dépend de sa nature, de son état et de sa température.

Ci-dessous, un tableau présente quelques valeurs de résistivités. Ces données sont extraites des références [230], [231] et [200].

Matériau	Température (K)	Résistivité ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)
Graphite	293	1000-1700 [231]
	2000	900-1400 [188]
Vanadium	300	20,2 [230]
	1900	109,5 [200]
Chrome	300	12,7 [230]
	900	39,9 [230]
Zirconium	293	42,1 [230] / 55 [231]
	2000	132,4 [200]
Niobium	273	15,2 [230] / 16 [231]
	2000	72,4 [200]
Molybdène	300	5,52 [230] / 5,7 [231]
	2000	52,8 [200]
Ruthénium	273	7,1 [230]
	293	7,6 [231]
Rhodium	273	4,3 [230] / 4,51 [231]
	2000	47,5 [200]
Tantale	300	13,5 [230] / 12,5 [231]
	2000	81 [200]
Tungstène	300	5,44 [230] / 5,5 [231]
	2000	56,2 [200]
Rhénium	273	17,2 [230]
	2000	98,9 [200]
Osmium	273	8,1 [230]
	293	8,12 [231]
Iridium	273	4,7 [230]
	300	5,3 [231]
Platine	300	10,8 [230] / 9,81 [231]
	900	32,0 [230]

tableau 22_ Valeur de la résistivité de différents matériaux à différentes températures.

A température ambiante, il apparaît que le carbone possède une résistivité électrique beaucoup plus élevée que les métaux présentés dans cette liste. Sa valeur est très variable et dépend du type de graphite utilisé. Toutefois, alors que la résistivité des métaux augmente avec la température, celle du carbone va

commencer par diminuer jusqu'à environ 1000°C puis augmenter. Avec les métaux, la section des tubes fabriqués peut être beaucoup plus faible qu'avec le carbone à cause de leurs caractéristiques mécaniques plus adaptées au façonnage (feuilles minces, souples, pliables, soudables). Par exemple, le tube ioniseur en carbone de SISTHE présente un diamètre intérieur de 4 mm et un diamètre extérieur de 6 mm soit une section conductrice de 16 mm². Avec les métaux, on peut généralement disposer de feuille d'épaisseur 100 µm. Si l'on roule cette feuille pour obtenir un tube de diamètre intérieur 4 mm et d'épaisseur 100µm, la section résultante est de 1.3 mm². On gagne donc avec les métaux un facteur 12 sur la section de passage du courant par rapport au carbone. Dans le cas de cet exemple, ce facteur compense la différence de résistivité. Cela explique que les champs électriques mesurés sur SISTHE soient du même ordre de grandeur pour les deux tubes ioniseur. Du point de vue de la résistivité, le choix entre carbone ou métal n'est pas immédiat.

Conclusion

Matériau	Φ (eV)	Résistivité (10 ⁻⁸ Ω.m) à 2000 K	Température (K) max d'utilisation à 10 ⁻⁵ mbar	Forme	Prix
Graphite	4,5-5	900-1400	2200	Pièces usinées	Prix au kg très faible
Zirconium	4,05	132,4	2000	Feuille 0,1mm	37 (€.cm ⁻²)
Niobium	4,3	72,4	2350		21 (€.cm ⁻²)
Molybdène	4,6	52,8	2250		138 (€.cm ⁻²)
Rhodium	4,98	47,5	1800		22 (€.cm ⁻²)
Tantale	4,25	81	2650		20 (€.cm ⁻²)
Rhénium	4,72	98,9	2600		88 (€.cm ⁻²)
Iridium	5,6	-	2200		106 (€.cm ⁻²)
Platine	5,64	-	1900		62 (€.cm ⁻²)
Tungstène	4,55	56,2	2850		8,2 (€.cm ⁻²)
Ruthénium	4,71	-	2150	Poudre 500µm	252 (€.cm ⁻²)
Osmium	5,93	-	2550		74 (€.g ⁻¹)

tableau 23_ Tableau de synthèse récapitulant les propriétés importantes pour l'utilisation dans une source d'ionisation de surface. Pour chacune des propriétés, les matériaux ont été classés en trois catégories (rouge : peu favorable, orange : favorable, et vert : très favorable).

Le graphite est un matériau simple d'utilisation pour une source à ionisation de surface [160]. En effet, il est peu cher, facilement usinable et supporte de

hautes températures. Sa très grande résistivité électrique permet de créer un champ électrique favorisant l'extraction des ions. Le travail de sortie de l'électron du carbone est élevé ce qui en fait un bon candidat pour le tube ioniseur. Malgré tout, il pourrait être pollué en surface par l'uranium provenant de la cible si la plage de température de fonctionnement n'est pas bien choisie, ce qui pourrait altérer ses capacités ionisantes. Le graphite présente un état de surface plus irrégulier qu'un métal, et de ce point de vue il ne constitue pas forcément le matériau idéal pour un tube de transfert. En effet, cela peut conduire à des temps de résidence plus importants.

Le rhénium a parfois été utilisé dans des sources d'ionisation de surface (voir la partie 2.2 du 2nd chapitre). Sa température de fusion élevée ainsi que sa forte résistivité et son travail de sortie élevé en font un très bon candidat.

Annexe 2.3

Simulations RIBO

Cette annexe présente la démarche suivie pour simuler l'effusion des particules dans la cavité du dispositif SISTHE. Ces simulations permettent de contrôler l'influence du positionnement de la feuille dans la cavité car celle-ci est placée de manière peu précise. L'évolution de la proportion d'atomes qui effusent au travers de chacun des orifices de sortie est étudiée en fonction de la position de cette feuille et de son inclinaison.

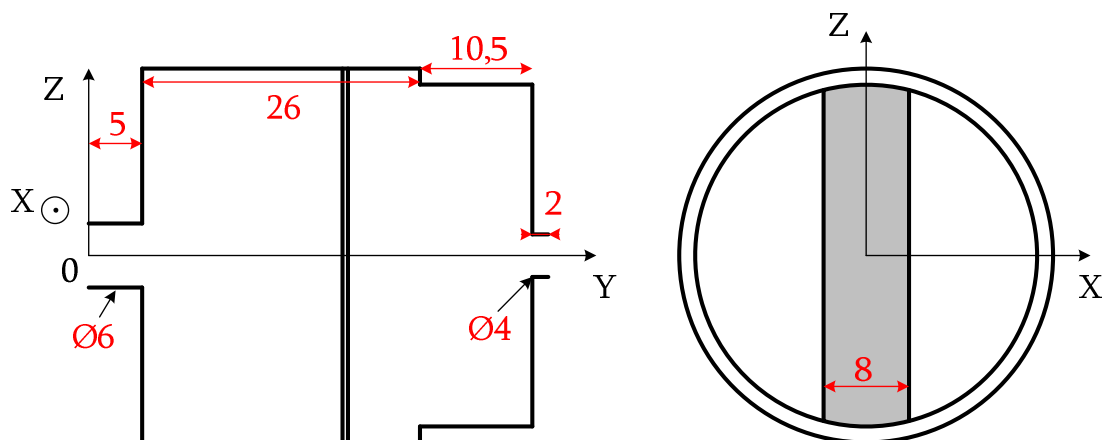


Fig. 1 Schéma de la cavité utilisé dans la simulation RIBO. Les atomes sont implantés sur la feuille (zone grise) et peuvent sortir vers l'orifice d'entrée ($\varnothing 6$), ou vers le tube ioniseur ($\varnothing 4$).

Dans tous ces calculs, la statistique est de 5000 atomes, le mode effusion seul (sans diffusion) est choisi, la température des parois est fixée à 1000 K, les interactions avec le gaz résiduel sont négligées. Le modèle physique utilisé pour décrire les réflexions des atomes sur les murs suit une loi en cosinus (modèle de Lambert). Différents cas de figures sont étudiés et les résultats sont présentés ci-dessous. Le faisceau d'ions présentant un diamètre de 3 mm, est implanté dans la cellule 8, à une profondeur de 18 nm (profondeur de pénétration d'ions lithium à une énergie de 1 keV).

Influence de la position de la feuille.

Coord. Y de la feuille (cm)	Nombre moyen de coll	Dist moy entre coll (cm)	% sort orifice d'entrée (plan1)	% sort côté ioniseur (plan 7)
0,51	38	2,05	95,1	4,9
0,6	187	2,28	73,4	26,6
1	240	2,28	66	34
2	250	2,28	66,3	33,7
3	254	2,28	65,9	34,1
3,5	251	2,28	67,3	32,7
4	322	2,3	85	15
4,1	356	2,38	99,7	0,3

Le même type de calcul est réalisé en plaçant la feuille à $y = 2$ cm, mais en l'inclinant selon l'axe X.

Influence de l'angle de la feuille.

Angle de la feuille (°) /Z	Nombre moyen de coll	Dist moy entre coll (cm)	% sort plan 1	% sort côté ioniseur (plan 7)
0	250	2.28	66,3	33,7
30	248	2,28	65,3	34,7
60	318	1,96	64,5	35,5

La proportion de particules sortant à chaque extrémité de la cavité est peu influencée par la position de la feuille dans la cavité sauf si la feuille est placée à moins de 5 mm d'un des orifices de sortie. Les variations observées pour une position de feuille allant de $Y = 1$ à 3,5 cm sont comparables aux fluctuations statistiques. De même, on constate que l'inclinaison de la feuille affecte peu cette proportion. Lorsque la feuille est plus inclinée le nombre de collisions augmente car la surface de la feuille devient plus grande. Les proportions calculées dans le cas de la feuille placée au milieu de la cavité à 90° sont cohérentes avec le calcul du rapport de conductance entre les deux orifices (31% vers l'ioniseur et 69% vers le canon à ions).

Annexe 2.4

Canon à ion

Emetteur d'alcalins.

La source émettrice d'alcalins est fournie par la société HeatWave Labs [187]. Le principe de fonctionnement des ces émetteurs est le suivant : une couche poreuse de tungstène dopée en alcalins est placée sur le culot d'un gobelet en tungstène. Un filament chauffant est inséré dans un isolant électrique en céramique, lui-même inséré dans le gobelet. La montée en température du filament permet d'évaporer les alcalins sous forme d'ions. D'après le constructeur, pour une puissance appliquée au filament d'environ 10 W, l'émetteur est porté à 1100°C. Dans ces conditions il doit pouvoir délivrer un courant compris entre 1 et 10 mA.cm⁻², pendant des centaines d'heures.



Fig. 136_ Photo d'un émetteur d'alcalins utilisé dans le canon à ion.

Au cours des mesures, différents émetteurs ont été testés en fonction de l'alcalins à étudier. Ainsi, des émetteurs de lithium, sodium, potassium, rubidium et césium ont été utilisés. Lorsque que l'isotope n'est pas précisé, l'émetteur contient les différents isotopes de l'élément avec les abondances naturelles. Ainsi, l'émetteur de ⁷Li ne contenait que cet isotope alors que les émetteurs de Rb et de K contenaient les différents isotopes (⁸⁷Rb, ⁸⁵Rb et ⁴¹K, ³⁹K), dans les proportions correspondant aux abondances naturelles.

Les puissances imposées au filament étaient plutôt de l'ordre de 15 à 20 W. Cette différence avec les valeurs préconisées par le constructeur peut s'expliquer par la dissipation d'une partie de cette puissance par la pièce de support de l'émetteur. Les courants maximums qui ont pu être extraits de ces émetteurs n'ont pas dépassés 6 µA pour l'émetteur de Li, 10 µA pour les émetteurs de K, Rb et Cs

et $15\ \mu\text{A}$ pour celle de Na. Ces performances sont nettement en deçà des prédictions du constructeur ($300\ \mu\text{A}$ pour cette taille d'émetteur).

Le fournisseur précise dans les spécifications qu'une petite quantité d'impuretés (d'autres alcalins) peuvent être trouvées dans l'échantillon au moment de la première montée en température. Pour les émetteurs de Cs, Rb et K, la quantité de polluants observée était négligeable. Lors de l'utilisation de l'émetteur de Li, des quantités comparables, voir supérieures de Rb, K et Na ont été observées. De même, avec l'émetteur de Na, les polluants Rb et K étaient présents. La quantité de ces polluants a diminué au bout de trois jours de fonctionnement à une puissance de $15\ \text{W}$ sur le filament. Cette anomalie s'est avérée utile car elle a permis de pouvoir changer d'alcalin sans avoir à démonter pour changer d'émetteur.

Détails de la connexion électrique du canon à ions.

Le schéma (Fig. 137) présente le détail du circuit électrique utilisé pour la calibration du canon à ions.

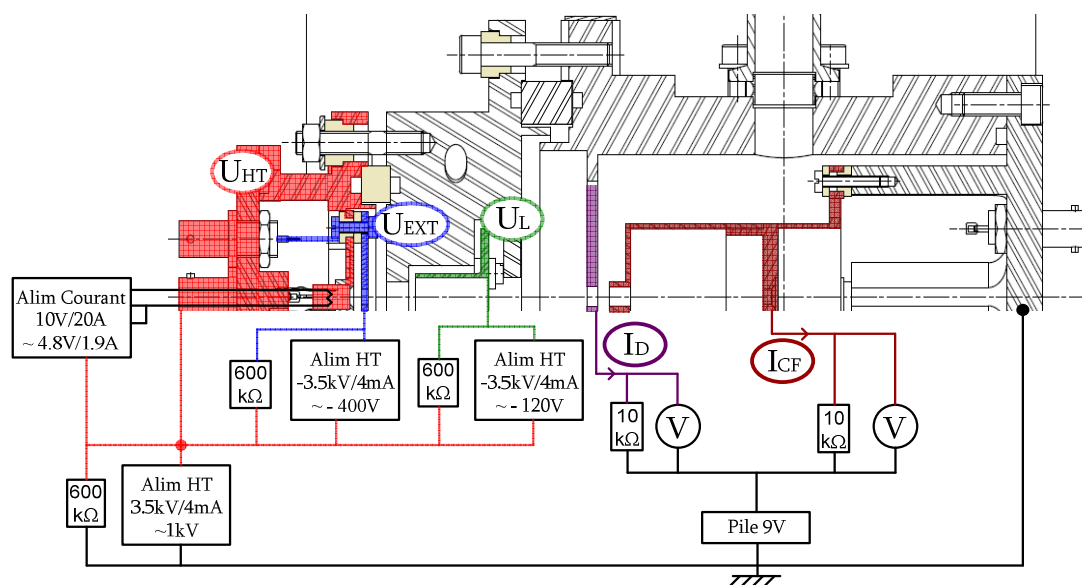


Fig. 137 _ Schéma électrique détaillé du canon à ions. On y retrouve les valeurs des résistances de charges et des valeurs indicatives des potentiels appliqués sur les différents éléments électrostatiques.

Annexe 2.5

Schéma électrique SISTHE

Cette annexe présente les spécifications techniques des systèmes utilisés avec SISTHE. Le schéma électrique de l'association du canon à ions à la source SISTHE est donné ci-dessous.

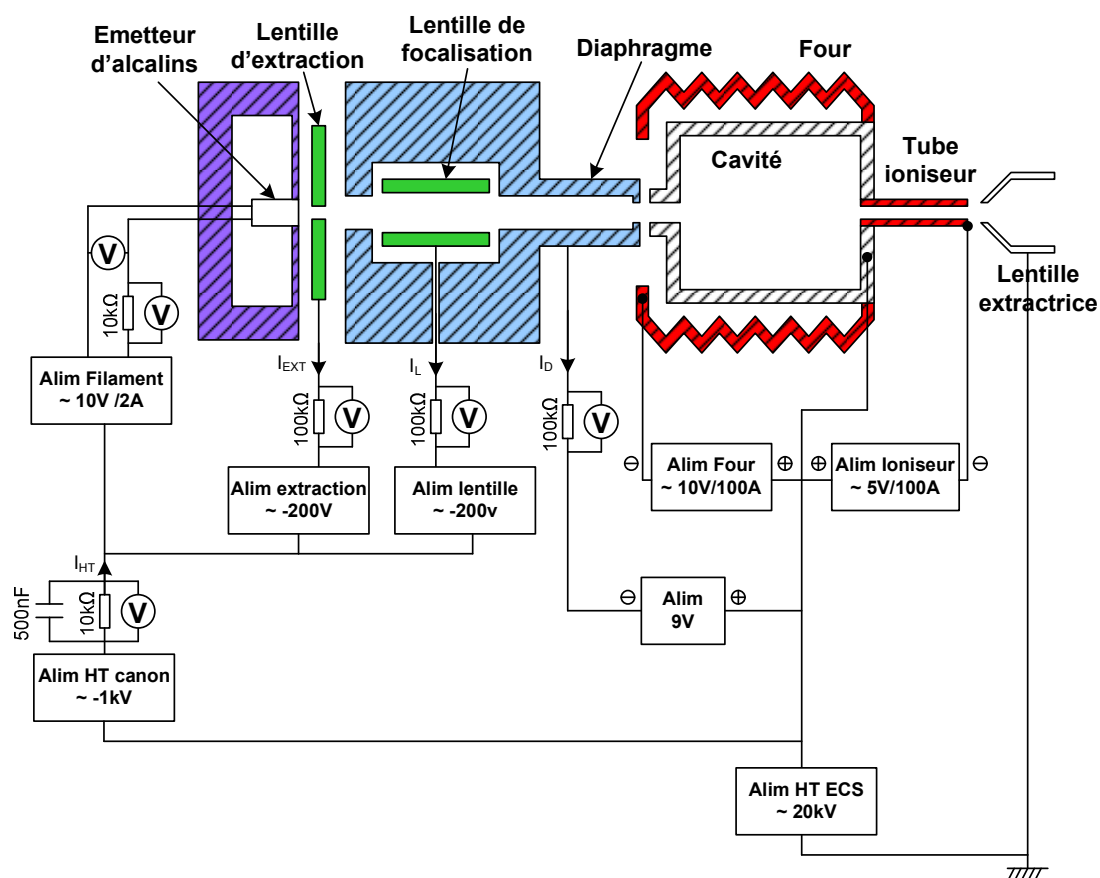


Fig. 138 _ Schéma électrique détaillé de l'association du canon à ions sur la source SISTHE.

Quelques-uns des éléments spécifiques utilisés dans ce montage sont présentés ci-dessous :

- Le diaphragme est polarisé à -9 V par rapport à la cavité afin de limiter la remontée d'électrons depuis le four et la cavité vers le diaphragme. En effet, ces deux parties en carbone sont très chaudes et susceptibles d'être fortement électro-émissives.

- Le signal récolté du débit de courant de la cathode (I_{HT}) comporte un important bruit de fond dû au réseau (50Hz). Un filtre RC (500 nF, 100 k Ω) a été appliqué sur ce signal afin d'atténuer ce bruit. Un facteur de correction (0,94) sur la valeur du courant I_{HT} est appliqué, afin de prendre en compte l'atténuation du filtre.

- Les différentes résistances de lecture de courant, ainsi que les gains des convertisseurs EOE utilisés pour l'acquisition des signaux I_{HT} et I_D ont été mesurés précisément, afin de limiter les erreurs systématiques. La résistance interne de l'oscilloscope permettant de mesurer le courant récolté sur la CF, la résistance de mesure de I_{HT} et celle de mesure du courant déposé sur le diaphragme valent respectivement 995 k Ω , 100,1 k Ω et 98,3 k Ω . Les gains des convertisseurs utilisés pour la lecture du courant I_{HT} et pour la lecture du courant déposé sur le diaphragme valent respectivement 0,949 et 0,9825.

- Les références des convertisseurs EOE utilisés sont les suivantes :
Dymec, 1MHz Analog fiber optic data link.

Transmetteur : modèle 6711-9338

Récepteur : modèle 6732-9338

Ces produits ne sont malheureusement plus disponibles à la vente, il n'a pas été possible de trouver de produit présentant des performances équivalentes.

- Les réponses enregistrées sont additionnées pour être moyennées et ainsi diminuer l'amplitude relative du bruit de fond. La période effective entre impulsions est toujours choisie de façon à ne pas correspondre à un multiple entier de la période réseau (20 ms) de façon à faire disparaître la composante 50 Hz du bruit de fond au bout de quelques périodes d'enregistrement. De plus, la période d'enregistrement est choisie suffisamment longue par rapport aux temps de réponse pour éviter l'empilement des réponses.

Annexe 2.6

Coefficients d'émissivité utilisés au cours des calibrations

Les émissivités totales utilisées au cours des mesures de températures avec le pyromètre optique sont présentées sur le graphique ci-dessous (Fig. 139). Les matériaux qui ont été visés au cours des mesures sont le tantale, le rhénium [200], le papyex [188] et le graphite [225].

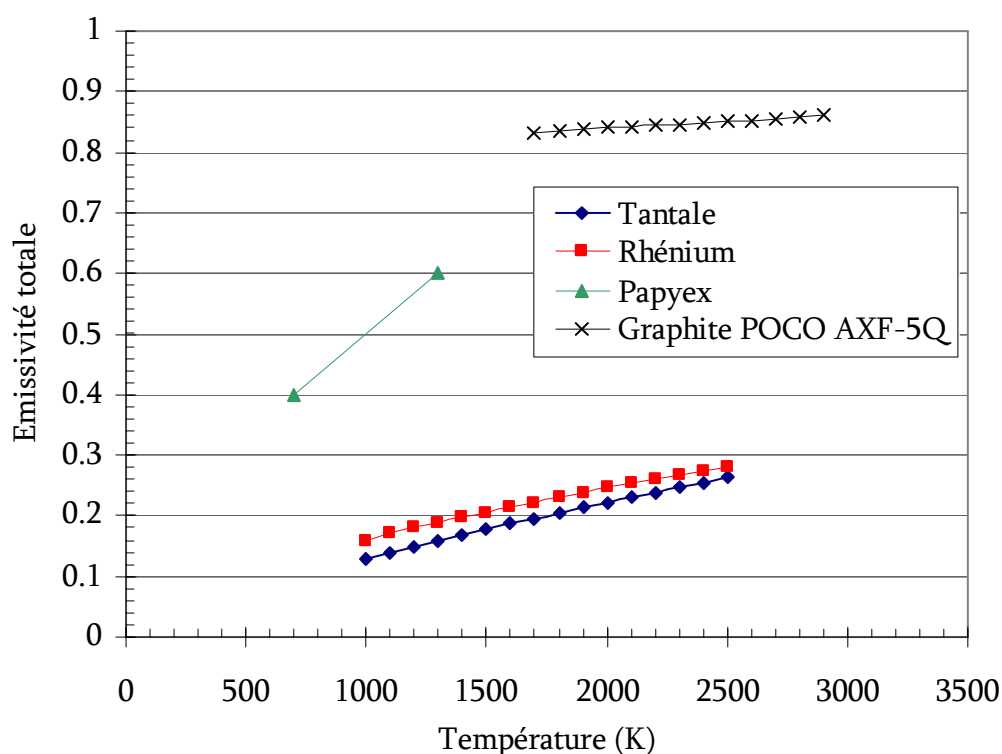


Fig. 139 _ Evolution de l'émissivité totale du tantale, du rhénium, du papyex et du graphite POCO en fonction de la température.

Annexe 2.7

Modèle analytique

Cette annexe présente la résolution complète du modèle analytique utilisé pour rendre compte de l'allure des courbes de réponse obtenues.

Présentation du modèle.

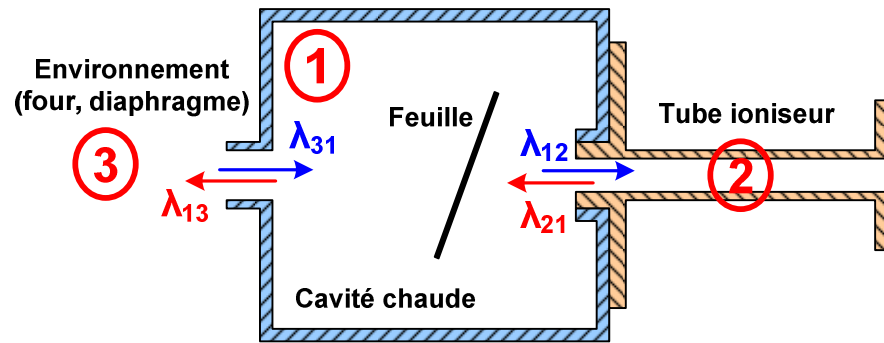


Fig. 140_ Schéma de principe du dispositif. On y distingue les trois zones principales qui seront utilisées dans la description analytique : 1-cavité, 2-tube ioniseur et 3-environnement rencontré en cas de sortie des atomes vers le canon à ions.

Cet ensemble est gouverné par un système de 4 équations différentielles couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_3(t)}{dt} = \lambda_{13} \cdot n_1(t) - (\lambda_{31} + \lambda_p) \cdot n_3(t) \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = \lambda_{31} \cdot n_3(t) + \lambda_{21} \cdot n_2(t) + \tau_0(t) - (\lambda_{13} + \lambda_{12}) \cdot n_1(t) \\ \frac{dn_a(t)}{dt} = \lambda_{12} \cdot n_1(t) + \lambda_0 \cdot n_i(t) - (\lambda_{as} + \lambda_i + \lambda_{21}) \cdot n_a(t) \\ \frac{dn_i(t)}{dt} = \lambda_i \cdot n_a(t) - (\lambda_0 + \lambda_{is}) \cdot n_i(t) \end{array} \right. \quad (62)$$

Avec n_1 et n_3 respectivement le nombre d'atomes dans la cavité et dans son environnement, n_i et n_a représentent le nombre d'ions et d'atomes dans le tube

ioniseur. Les termes du type λ_{ij} quantifient la « vitesse » de passage des atomes de la zone i vers la zone j . λ_p est un terme de perte dans la zone 3 qui permet de rendre compte des atomes se collant dans une zone suffisamment froide de l'environnement pour ne jamais se redécoller. λ_i et λ_o représentent respectivement les vitesses d'ionisation et de neutralisation, λ_{as} et λ_{is} représentent les vitesses de sortie atomique et ionique du tube ioniseur. Le terme τ_o constitue le terme source de la cavité. Ce terme provient du relâchement des atomes implantés sur la feuille. On choisit de l'exprimer de la manière suivante :

$$\tau_o(t) = \lambda_{rel} \cdot N_o \cdot e^{-\lambda_{rel} \cdot t} \quad (63)$$

N_o représente le nombre d'atomes implantés sur la feuille et λ_{rel} la vitesse de relâchement des atomes par cette feuille. Compte tenu de la faible profondeur d'implantation des ions dans la feuille leur relâchement peut être décrit par une seule exponentielle.

Le but est de déterminer $\lambda_{is} \cdot n_i(t)$, terme correspondant à la quantité d'ions sortant du ioniseur et mesuré expérimentalement. Un tel système d'équations conduit à des solutions complexes qui ne permettent pas d'effectuer un ajustement simple et donc fiable des données récoltées (plusieurs jeux de paramètres possibles).

Hypothèses.

Afin de simplifier ces expressions, les hypothèses suivantes sont admises dans la suite de la démarche :

- On considère que les atomes une fois rentrés dans le tube ioniseur ne peuvent ressortir vers la cavité. En effet, pour le ^{85}Rb , ^{133}Cs et ^{39}K la probabilité d'ionisation par contact sur le rhénium et sur le carbone est proche de 100%. Dès le premier contact avec la paroi du tube ioniseur, les atomes transformés en ions seront conduits vers la sortie par le champ électrique. Cette hypothèse revient à poser $\lambda_{21} = 0$ et permet de découpler les deux équations régissant le comportement du tube ioniseur du reste du système.

- On peut aussi découpler les deux premières équations du système en considérant que les milieux 1 et 3 se partagent le terme source et injectent chacun indépendamment leur atome dans le tube ioniseur 2 (voir Fig. 141). Le paramètre λ_{32} , correspond aux phénomènes qui peuvent donner lieu à la présence d'atomes ou d'ions alcalins à des temps plus importants que les temps caractéristiques de la cavité et du tube ioniseur : la diffusion des atomes dans l'épaisseur de la paroi de la cavité par exemple. On introduit les poids α et β des

termes source de la cavité 1 et de son environnement 3 de telle sorte que leur somme correspondent à 100% des atomes injectés ($\alpha + \beta = 1$ et $0 < \beta < \alpha$).

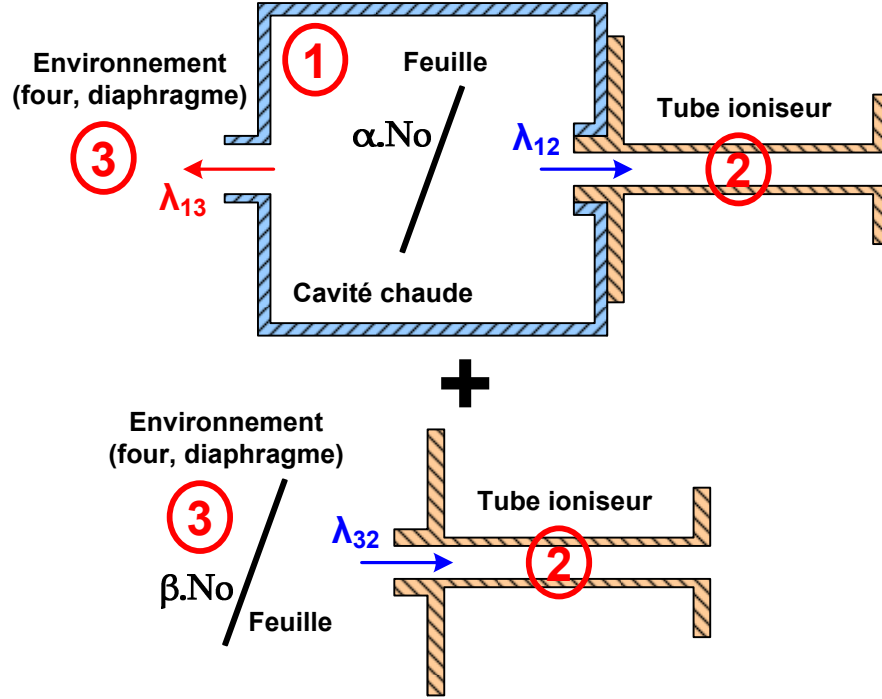


Fig. 141 _ Schéma de principe du dispositif permettant d'effectuer les hypothèses visant à la simplification du système d'équation.

Sous ces hypothèses, le système se simplifie de la manière suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_3(t)}{dt} = \beta \cdot \tau_0(t) - \lambda_{32} \cdot n_3(t) \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = \alpha \cdot \tau_0(t) - (\lambda_{13} + \lambda_{12}) \cdot n_1(t) \\ \frac{dn_a(t)}{dt} = \lambda_{12} \cdot n_1(t) + \lambda_{32} \cdot n_3(t) + \lambda_0 \cdot n_i(t) - (\lambda_{as} + \lambda_i) \cdot n_a(t) \\ \frac{dn_i(t)}{dt} = \lambda_i \cdot n_a(t) - (\lambda_0 + \lambda_{is}) \cdot n_i(t) \end{array} \right. \quad (64)$$

Résolution du système.

Les deux premières équations de ce système sont indépendantes. Avec les conditions initiales $n_3(0) = n_1(0) = 0$, on obtient :

$$\begin{aligned} n_3(t) &= \frac{\beta \cdot N_0 \cdot \lambda_{rel}}{\lambda_{32} - \lambda_{rel}} \cdot (e^{-\lambda_{rel} \cdot t} - e^{-\lambda_{32} \cdot t}) \\ n_1(t) &= \frac{\alpha \cdot N_0 \cdot \lambda_{rel}}{\lambda_{12} + \lambda_{13} - \lambda_{rel}} \cdot (e^{-\lambda_{rel} \cdot t} - e^{-(\lambda_{12} + \lambda_{13}) \cdot t}) \end{aligned} \quad (65)$$

Les deux dernières équations du système sont couplées. Au cours de leur résolution, le terme source τ_1 (66) est introduit afin de simplifier les expressions (67).

$$\tau_1(t) = \lambda_{12} \cdot n_1(t) + \lambda_{32} \cdot n_3(t) \quad (66)$$

La transformée de Laplace de ces équations est effectuée avec les conditions initiales suivantes : $n_i(0) = n_a(0) = 0$.

$$\begin{cases} N_a(p) \cdot (p + \lambda_i + \lambda_{as}) = T_1(p) + \lambda_0 \cdot N_i(p) \\ N_i(p) \cdot (p + \lambda_o + \lambda_{is}) = \lambda_i \cdot N_a(p) \end{cases} \quad (67)$$

Une substitution et un calcul des racines du polynôme obtenu conduisent à l'expression de la transformée de Laplace de N_i , le nombre d'ions dans le tube ioniseur :

$$N_i(p) = \frac{\lambda_i \cdot T_1(p)}{(p - p_+) \cdot (p - p_-)} = \frac{\lambda_i \cdot T_1(p)}{p_+ - p_-} \cdot \left(\frac{1}{p - p_+} - \frac{1}{p - p_-} \right) \quad (68)$$

Avec

$$\begin{aligned} p_{\pm} &= -\frac{\lambda_i + \lambda_o + \lambda_{is} + \lambda_{as} \pm \sqrt{\Delta}}{2} \\ \Delta &= (\lambda_i + \lambda_o + \lambda_{is} + \lambda_{as})^2 - 4 \cdot (\lambda_o \cdot \lambda_{as} + \lambda_i \cdot \lambda_{is} + \lambda_{is} \cdot \lambda_{as}) \\ &= (\lambda_i + \lambda_{as} - \lambda_o - \lambda_{is})^2 + 4 \cdot \lambda_o \cdot \lambda_i \end{aligned} \quad (69)$$

On applique maintenant la transformée de Laplace inverse :

$$n_i(t) = \frac{\lambda_i}{p_+ - p_-} \cdot \int_0^t (e^{p_+ \cdot (t-x)} - e^{p_- \cdot (t-x)}) \cdot \tau_1(x) \cdot dx \quad (70)$$

$$n_i(t) = \frac{N_0 \cdot \lambda_i \cdot \lambda_{rel}}{p_+ - p_-} \cdot \left\{ \begin{aligned} &\left[\left(\frac{\lambda_{32} \cdot \beta}{\lambda_{32} - \lambda_{rel}} \right) \cdot \left(\frac{1}{p_+ + \lambda_{rel}} - \frac{1}{p_+ + \lambda_{32}} \right) + \left(\frac{\lambda_{12} \cdot \alpha}{\lambda_{12} + \lambda_{13} - \lambda_{rel}} \right) \cdot \left(\frac{1}{p_+ + \lambda_{rel}} - \frac{1}{p_+ + \lambda_{12} + \lambda_{13}} \right) \right] \cdot e^{p_+ \cdot t} \\ &- \left[\left(\frac{\lambda_{32} \cdot \beta}{\lambda_{32} - \lambda_{rel}} \right) \cdot \left(\frac{1}{p_- + \lambda_{rel}} - \frac{1}{p_- + \lambda_{32}} \right) + \left(\frac{\lambda_{12} \cdot \alpha}{\lambda_{12} + \lambda_{13} - \lambda_{rel}} \right) \cdot \left(\frac{1}{p_- + \lambda_{rel}} - \frac{1}{p_- + \lambda_{12} + \lambda_{13}} \right) \right] \cdot e^{p_- \cdot t} \\ &+ \left[\left(\frac{\lambda_{32} \cdot \beta}{\lambda_{32} - \lambda_{rel}} \right) \cdot \left(\frac{1}{p_+ + \lambda_{32}} - \frac{1}{p_- + \lambda_{32}} \right) \right] \cdot e^{-\lambda_{32} \cdot t} \\ &+ \left[\left(\frac{\lambda_{12} \cdot \alpha}{\lambda_{12} + \lambda_{13} - \lambda_{rel}} \right) \cdot \left(\frac{1}{p_+ + \lambda_{12} + \lambda_{13}} - \frac{1}{p_- + \lambda_{12} + \lambda_{13}} \right) \right] \cdot e^{-(\lambda_{12} + \lambda_{13}) \cdot t} \\ &- \left[\left(\frac{\lambda_{12} \cdot \alpha}{\lambda_{12} + \lambda_{13} - \lambda_{rel}} + \frac{\lambda_{32} \cdot \beta}{\lambda_{32} - \lambda_{rel}} \right) \cdot \left(\frac{1}{p_+ + \lambda_{rel}} - \frac{1}{p_- + \lambda_{rel}} \right) \right] \cdot e^{-\lambda_{rel} \cdot t} \end{aligned} \right\} \quad (71)$$

On constate que cette expression est constituée de la somme de cinq exponentielles, les deux exponentielles en p_+ et p_- représentent respectivement un temps de montée et un temps de descente liés au tube ioniseur. L'exponentielle en λ_{rel} donne une phase de montée due au relâchement des atomes de la feuille. Les deux dernières exponentielles en $\lambda_{12}+\lambda_{13}$ et λ_{32} représentent deux termes de descente. La première est liée à l'effusion des atomes qui sortent de la cavité. λ_{32} correspond aux phénomènes qui peuvent donner lieu à la présence d'atomes ou d'ions alcalins à des temps plus importants que les temps caractéristiques de la cavité et du tube ioniseur. L'amplitude du courant d'ions relâché est croissante avec le taux d'ionisation λ_i .

Quelques remarques permettent de simplifier cette expression. Tout d'abord, l'allure mesurée des courbes de réponse à des impulsions, indique que la phase de montée est très courte devant la phase de descente. Cela permet de négliger les vitesses d'effusion ($\lambda_{12}+\lambda_{13}$ et λ_{32}) devant la vitesse de relâchement de la feuille λ_{rel} . De plus, les mesures ont montrées que la variation de la température du tube ioniseur a peu d'influence sur les temps caractéristiques des réponses. Les vitesses d'effusion ($\lambda_{12}+\lambda_{13}$ et λ_{32}) sont donc aussi négligeables devant les termes rendant compte de la vitesse de réponse du tube ioniseur (p_+ et p_-). Ces approximations simplifient l'expression précédente qui devient alors :

$$n_i(t) = N_0 \cdot \lambda_i \cdot \left\{ \begin{aligned} & \frac{\lambda_{rel} \cdot (\alpha \cdot \lambda_{12} + \beta \cdot \lambda_{32})}{p_+ \cdot (p_+ - p_-) \cdot (p_+ + \lambda_{rel})} \cdot e^{p_+ \cdot t} - \frac{\lambda_{rel} \cdot (\alpha \cdot \lambda_{12} + \beta \cdot \lambda_{32})}{p_- \cdot (p_+ - p_-) \cdot (p_- + \lambda_{rel})} \cdot e^{p_- \cdot t} \\ & + \frac{\alpha \cdot \lambda_{12}}{p_+ \cdot p_-} \cdot e^{-(\lambda_{12} + \lambda_{13}) \cdot t} + \frac{\beta \cdot \lambda_{32}}{p_+ \cdot p_-} \cdot e^{-\lambda_{32} \cdot t} - \frac{\alpha \cdot \lambda_{12} + \beta \cdot \lambda_{32}}{(p_+ + \lambda_{rel}) \cdot (p_- + \lambda_{rel})} \cdot e^{-\lambda_{rel} \cdot t} \end{aligned} \right\} \quad (72)$$

Dans la partie 3.3.2 du second chapitre, nous avons montré comment relier le terme $\lambda_{12}+\lambda_{13}$ au temps de résidence des alcalins sur la paroi de la cavité. L'ajustement des fonctions de relâchement mesurées par la fonction analytique (72) permet ainsi de déterminer l'évolution du temps de résidence de différents alcalins en fonction de la température de la paroi en graphite.

Annexe 3.1

Etude du transport du faisceau issu de la source ECR

L'intensité du faisceau d'ions issu de la source ECR (*Electron Cyclotron Resonance*) est relativement importante par rapport à celles issues des autres sources. Pour cette raison, le faisceau issu de la source ECR est considéré comme dimensionnant pour la définition de la ligne basse énergie.

Pour optimiser le transport du faisceau depuis la source jusqu'à la coupelle de Faraday, les paramètres disponibles en ligne sur le banc utilisé sont : la position de l'électrode d'extraction, la position de la lentille électrostatique et sa tension. La géométrie des électrodes est fixée ainsi que le potentiel de l'électrode d'extraction, reliée à la masse 0 V.

Les paramètres de fonctionnement de la source n'ont pas été modifiés durant l'optimisation du transport car une augmentation du courant de faisceau extrait conduit à des pertes supplémentaires par effet de charge d'espace. D'autre part une modification du champ magnétique agit simultanément sur le fonctionnement de la source et sur le transport du faisceau au niveau de l'extraction. Il devient alors difficile de distinguer une amélioration du transport d'un changement de régime source à partir de la seule observation du courant collecté dans la CF.

Le courant dans les bobines a été maintenu constant, à savoir 320 A dans les petites bobines (A et D) et 4, 445 A dans les grandes bobines (B et C). L'optimisation a été effectuée dans les conditions C4 (voir la partie 2.4 du chapitre 3), pour lesquelles le courant des bobines est limité. Le courant a été maintenu entre 640 μA et 810 μA , valeur proche du courant maximum ($\sim 900 \mu\text{A}$) qu'il est possible de produire avec cette source, de façon à maximiser les pertes. La structure magnétique de cette source ECR étant à symétrie cylindrique, une augmentation ultérieure du courant des bobines et, par conséquent, du champ conduira probablement à une amélioration du transport.

Le transport est calculé à partir du rapport entre la somme des courants collectés sur la cage de Faraday au cours d'un spectre et le courant total délivré par la source. Il est donc principalement dépendant du courant de l'ion le plus abondant dans le spectre, en l'occurrence le gaz support N_2^+ .

La distance entre l'électrode d'extraction et l'électrode plasma a été balayée de 21,5 mm à 48,5 mm pour une différence de tension de 15 kV. L'optimum (voir Fig. 142) a été déterminé en fonction du rapport entre le courant de l'ion N_2^+ et le courant débité par la source. Pour chaque position de l'électrode d'extraction, la tension de la lentille a été optimisée. La lentille a été maintenue accolée mécaniquement à l'électrode d'extraction.

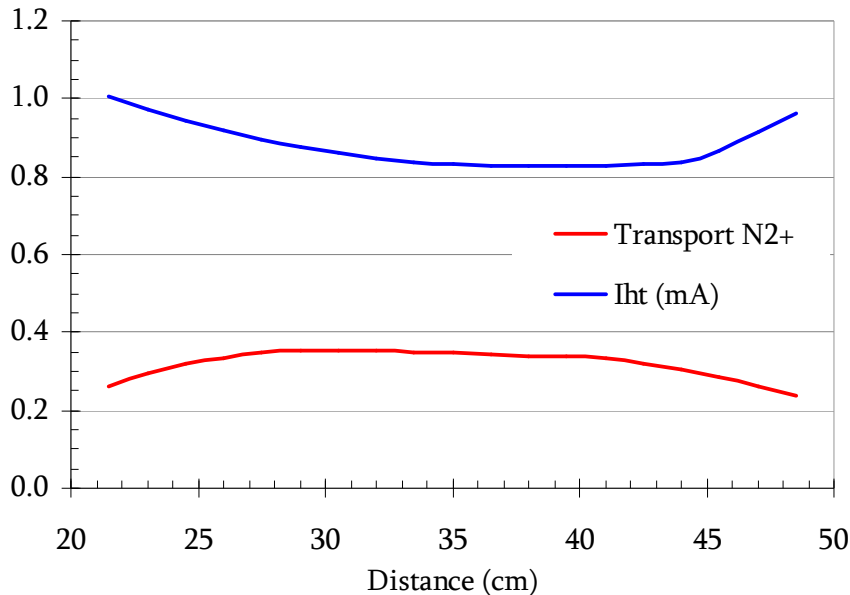


Fig. 142 _ Graphique présentant l'évolution du transport des ions N_2^+ entre la source et la CF (en unités arbitraires) et du courant I_{HT} débité en fonction de la distance inter-électrodes.

La position retenue pour les tests suivants a été de 31 mm. Cette valeur peut être prise comme référence lors la conception de l'extraction propre à la source ECR de l'ECS de SPIRAL 2 si la tension de la première électrode d'extraction est fixée à -15 kV par rapport à la source ECR.

Pour chaque point de mesure, le courant collecté par l'électrode d'extraction a aussi été mesuré (Fig. 143). Son allure en fonction de la position de l'électrode montre qu'à 31 mm, le courant perdu sur cette électrode était très faible (de l'ordre du μA , à comparer à plusieurs centaines de μA débités par la source). Le courant total débité par la source n'était donc pas faussé par une perte d'ions sur cette électrode, ni par une remontée d'électrons émis par pulvérisation.

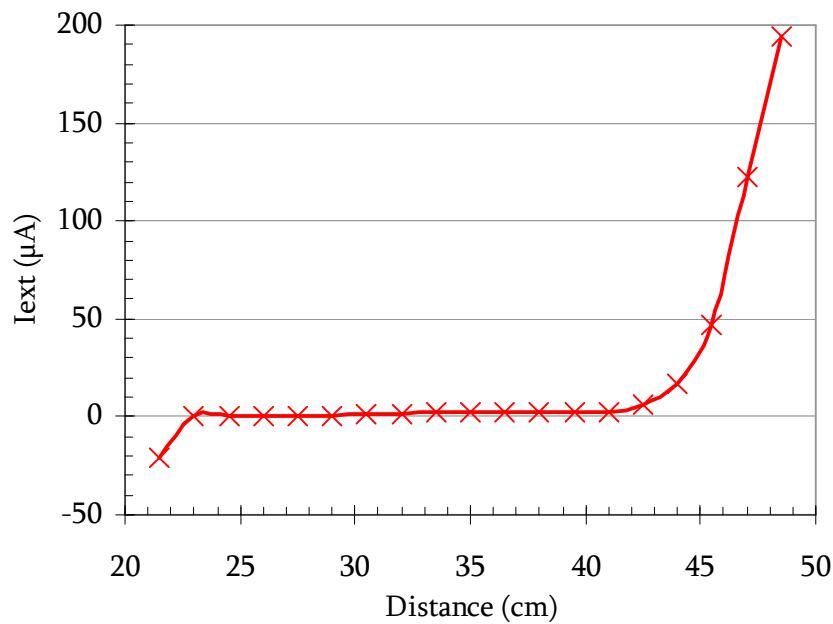


Fig. 143 – Graphique présentant l'évolution du courant collecté par l'électrode d'extraction (en μA) en fonction de la distance inter-électrodes.

La tension appliquée sur la lentille n'a que peu d'effet sur le transport, entre 10,3 et 10,8 kV. Dans des conditions optimisées, le transport a été estimé proche de 100%. Néanmoins, il apparaît que la coupelle de Faraday est trop petite pour récolter l'intégralité du faisceau. Cette CF est munie d'un bouclier. Lors de l'estimation du transport, le courant récolté sur le bouclier a été ajouté à celui de la CF. Cela n'est pas entièrement satisfaisant car des électrons secondaires peuvent être émis par ce bouclier et fausser l'efficacité de transport. La CF du banc de test dédié aux ECS de SPIRAL 2 doit être remplacée par une CF de plus grand diamètre et être munie d'un bouclier.

Annexe 3.2

Mesures d'émittances

Le but de l'optimisation du transport était d'effectuer des mesures d'émittances, et que ces mesures soient représentatives de la plus grande partie du faisceau extrait de la source. Après optimisation, l'émittance du faisceau de N_2^+ et du faisceau d' Ar^+ a été mesurée pour une efficacité de transport proche de 100%. L'acceptance de la ligne BE est posée égale à $80 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$. L'émittance RMS du faisceau a donc été calculée à partir du courant contenu dans une ellipse d'émittance géométrique de $80 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$ superposée à la figure d'émittance mesurée.

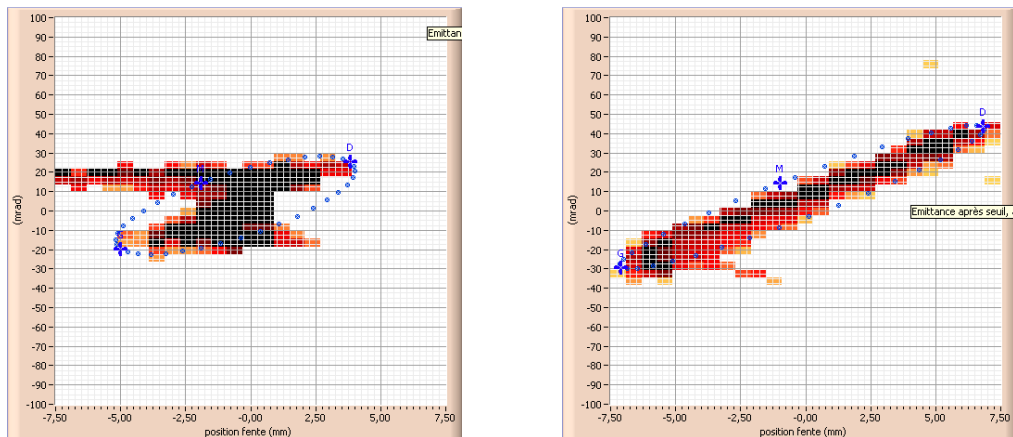


Fig. 144 _ Figure d'émittance mesurée pour le faisceau de N_2^+ . (à gauche) et de $^{40}Ar^+$ (à droite). Les émittances RMS valent respectivement de $67 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$ et $76 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$ pour 86% et 93% du faisceau dans une ellipse ayant une admittance de $81 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$.

Annexe 3.3

Résultats complémentaires

A chaque montée en température de la cible, le flux dégazé de la cible vers la source augmente mais peut aisément être compensé par une diminution du flux de gaz support injecté. La « bouffée » de gaz qui suit la montée en température commence à se résorber après environ ¼ d'heure et il devient alors nécessaire de réinjecter du gaz support pour maintenir le régime source.

Après changement de température cible, le régime source est de nouveau stable après un temps de l'ordre de 5 h. Cependant, après environ 90 mn, la dérive est déjà lente.

Après stabilisation, les fluctuations de courant sont de l'ordre de 1 à 2 μA pour un courant total débité par la source d'environ 800 μA .

Dans les conditions de fonctionnement de la source les plus fréquemment utilisées et qui correspondent à un débit total de la source de l'ordre de 700 μA (pour une puissance HF de 50 W et quelques W de puissance réfléchie), les ions les plus abondants dans le spectre sont issus du gaz support ($^{14}\text{N}^+$ et $^{28}\text{N}_2^+$). Le rapport en courant entre ces pics est proche d'un facteur 2.

Les pics issus de l'ionisation de l'eau et du carbone étaient présents lors de la première montée en température. Une journée plus tard, au cours de la seconde montée en température, ces pics ont fortement diminués. Il est probable que le carbone soit transporté jusque dans la source sous forme CO et CO₂ lorsque la cible est chaude. Il sera donc important dans le cadre de SPIRAL 2 que la cible soit étuvée avant insertion dans l'ECS et qu'une fois dans l'ECS, celle-ci soit dégazée jusqu'à élimination de l'eau pour limiter les risque de dépôt de carbone dans la source lors de montées plus importante en température.

Bibliographie

- [1] I. Tanihata, H. Hamagaki, O. Hashimoto, Y. Shida, N. Yoshikawa, K. Sugimoto, et al., Measurements of Interaction Cross Sections and Nuclear Radii in the Light p-Shell Region, *Phys. Rev. Lett.* 55 (1985) 2676.
- [2] K. Tanaka, T. Yamaguchi, T. Suzuki, T. Ohtsubo, M. Fukuda, D. Nishimura, et al., Observation of a Large Reaction Cross Section in the Drip-Line Nucleus ^{22}C , *Phys. Rev. Lett.* 104 (2010) 062701.
- [3] Y.T. Oganessian, F.S. Abdullin, P.D. Bailey, D.E. Benker, M.E. Bennett, S.N. Dmitriev, et al., Synthesis of a New Element with Atomic Number $Z=117$, *Phys. Rev. Lett.* 104 (2010) 142502.
- [4] T. Baumann, A.M. Amthor, D. Bazin, B.A. Brown, C.M.F. III, A. Gade, et al., Discovery of ^{40}Mg and ^{42}Al suggests neutron drip-line slant towards heavier isotopes, *Nature*. 449 (2007) 1022-1024.
- [5] V.I. Goldansky, On neutron-deficient isotopes of light nuclei and the phenomena of proton and two-proton radioactivity, *Nuclear Physics*. 19 482-495.
- [6] B. Blank, M. Płoszajczak, Two-proton radioactivity, *Rep. Prog. Phys.* 71 (2008) 046301.
- [7] J. Giovinazzo, B. Blank, M. Chartier, S. Czajkowski, A. Fleury, M.J. Lopez Jimenez, et al., Two-Proton Radioactivity of ^{45}Fe , *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002) 102501.
- [8] K. Miernik, W. Dominik, Z. Janas, M. Pfützner, L. Grigorenko, C. Bingham, et al., Two-proton radioactivity of ^{45}Fe , *Eur. Phys. J. A*. 42 (2009) 431-439.
- [9] FRIB: Welcome to FRIB, <http://www.frib.msu.edu/>.
- [10] FAIR - Facility for Antiproton and Ion Research, http://www.gsi.de/fair/index_e.html.
- [11] RIKEN Nishina Center for Accelerator-Based Science, <http://www.rarf.riken.go.jp/Eng/index.html>.
- [12] SPES, <http://www.lnl.infn.it/~spes/>.
- [13] The HIE-ISOLDE Project, <http://hie-isolde.web.cern.ch/hie%2Disolde/>.
- [14] GANIL - SPIRAL 2 — GANIL WEB PRO USERS, <http://pro.ganil-spiral2.eu/>.

- [15] EURISOL Design Study, <http://www.eurisol.org/site02/index.php>.
- [16] Physics Case — SPIRAL 2 White book, <http://pro.ganil-spiral2.eu/spiral2/what-is-spiral2/physics-case/view>.
- [17] N. Lecesne, C. Eleon, C. Feierstein, G. Gaubert, Y. Huguet, P. Jardin, et al., The radioactive ion beam production systems for the SPIRAL2 project, *Rev. Sci. Instrum.* **79** (2008) 02A907-4.
- [18] M.G. Saint Laurent, Future opportunities with SPIRAL2 at GANIL, Eighth International Topical Meeting on Nuclear Applications and Utilization of Accelerators (ACCAPP'07), Pocatello, Idaho (USA). (2007).
- [19] G. Lhersonneau, A. Pichard, M. Saint Laurent, F. De Oliveira Santos, M. Hass, T.Y. Hirsh, et al., Production Yield: simulation report ^6He and $^{14,15}\text{O}$ and ^{18}Ne , rapport européen, WP7.1 Milestone 7.1.1, 2009.
- [20] C. Lau, M. Cheikh Mhamed, S. Essabaa, Status of ionization by radial electron neat adaptation ion source research and development for SPIRAL2 and EURISOL-DS, *Rev. Sci. Instrum.* **79** (2008) 02A903.
- [21] C. Huet-Equibec, P. Jardin, P. Gorel, J. Pacquet, G. Gaubert, J. Cornell, et al., MONOBOB: A radiation-hard and efficient 2.45-GHz ECRIS dedicated to radioactive ion production, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* **240** (2005) 752-761.
- [22] A. Pichard, P. Jardin, M. Saint-Laurent, R. Frigot, O. Bajeat, P. Delahaye, et al., Development of a surface ionization source for the SPIRAL 2 project, *Rev. Sci. Instrum.* **81** (2010) 02A908.
- [23] N. Lecesne, R. Alvès-Condé, E. Coterreau, F. De Oliveira, M. Dubois, J.L. Flambard, et al., GISELE: A resonant ionization laser ion source for the production of radioactive ions at GANIL, *Rev. Sci. Instrum.* **81** (2010) 02A910.
- [24] DESIR, <http://www.cenbg.in2p3.fr/desir/>.
- [25] T. Lamy, R. Geller, P. Sortais, T. Thuillier, Status of charge breeding with electron cyclotron resonance ion sources, *Rev. Sci. Instrum.* **77** (2006) 03B101-6.
- [26] C. Tamburella, J.L. Belmont, G. Bizouard, J.F. Bruandet, R. Geller, G. Gimond, et al., Production of multicharged radioactive ion beams: The $1+$ to $n+$ charge state transformation for the Production, Ionisation, Accélération de Faisceaux Exotiques project, *Rev. Sci. Instrum.* **68** (1997) 2319.
- [27] F. Wenander, Charge breeding techniques, *Nuclear Physics A.* **746** (2004) 40-46.
- [28] A.C.C. Villari, First results at SPIRAL-GANIL, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials*

- and Atoms. 204 (2003) 31-41.
- [29] Soreq Nuclear Research Center, http://www.soreq.gov.il/default_EN.asp.
 - [30] Weizmann Institute of Science, <http://www.weizmann.ac.il/>.
 - [31] M. Moscatello, Liste de faisceaux « réduite » pour les études détaillées de la Section Faisceaux Radioactifs, rapport EDMS-IN2P3, I-009490, 2006.
 - [32] SPIRAL 2 WORKSHOP 2010 - RNB session, <http://spiral2ws.ganil.fr/2010/week/presentations/rnb/>.
 - [33] M. Saint-Laurent, Durée Cible BeO, rapport EDMS-IN2P3, I-017018v.1.0, 2009.
 - [34] M. Hass, D. Berkovits, T.Y. Hirsh, Texts of LoI for SPIRAL2 — GANIL WEB PRO USERS, <http://pro.ganil-spiral2.eu/spiral2/letters-of-intent/letters-of-intent-list/texts-of-loi-for-spiral2>.
 - [35] ISOLDE WEB, <http://isolde.web.cern.ch/ISOLDE/>.
 - [36] EXFOR/CSISRS: Experimental Nuclear Reaction Data, <http://www.nndc.bnl.gov/exfor/exfor00.htm>.
 - [37] T. Stora, Target and Ion Source Development, Isolde news letters, 2010.
 - [38] L. Penescu, R. Catherall, J. Lettry, T. Stora, Development of high efficiency Versatile Arc Discharge Ion Source at CERN ISOLDE, Rev. Sci. Instrum. 81 (2010) 02A906.
 - [39] M. Saint-Laurent, O. Bajeat, Taux ^6He , ^8Li , ^{15}C , ^{23}Ne , ^{24}Ne , ^{25}Ne , ^{24}Na , ^{25}Na , ^{26}Na , ^{27}Mg , rapport EDMS-IN2P3, I-021522, 2009.
 - [40] O. Aviv, D. Berkovits, M. Hass, O. Heber, T.Y. Hirsh, V. Kumar, et al., Light Radio-isotopes for Nuclear Astrophysics, Neutrino Physics and Fundamental Interactions, Présentation Orale à 10th International Spring Seminar on Nuclear Physics-New Quests in Nuclear Structure, Vietri Sul Mare. à paraître dans IOP online, Journal of Physics: Conference Series (2010).
 - [41] L. Canto, P. Gomes, R. Donangelo, M. Hussein, Fusion and breakup of weakly bound nuclei, Physics Reports. 424 (2006) 1-111.
 - [42] N. Keeley, N. Alamanos, K. Kemper, K. Rusek, Elastic scattering and reactions of light exotic beams, Progress in Particle and Nuclear Physics. 63 (2009) 396-447.
 - [43] A. Lemasson, Fusion et réactions directes autour de la barrière Coulombienne avec le noyau riche en neutrons ^8He ., Thèse de l'Université de Caen, 2010.
 - [44] TRIUMF : Canada's National Laboratory for Particle and Nuclear Physics, <http://www.triumf.ca/>.
 - [45] U. Köster, U.C. Bergmann, D. Carminati, R. Catherall, J. Cederkäll, J.G. Correia, et al., Oxide fiber targets at ISOLDE, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials

- and Atoms. 204 (2003) 303-313.
- [46] H. Frånberg, Production of exotic, short lived carbon isotopes in ISOL-type facilities, Thèse de l'Université de Bern, 2008.
 - [47] National Superconducting Cyclotron Laboratory (NSCL) | Stopped and reaccelerated beams (coming 2010),
<http://www.nscl.msu.edu/features/stopped-and-re-accelerated-beams>.
 - [48] M. Dombisky, L. Buchmann, J.M. D'Auria, P. McNeely, G. Roy, H. Sprenger, et al., Targets and ion sources at the TISOL facility, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 70 (1992) 125-130.
 - [49] Communication privée avec M. Dombisky, (2007).
 - [50] G.D. Alton, Targets and ion sources for RIB generation at the Holifield Radioactive Ion Beam Facility, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 382 (1996) 207-224.
 - [51] M. Gaelens, M. Huyse, M. Loiselet, G. Ryckewaert, P. Van Duppen, Development of radioactive ion beams of light elements at ARENAS 3, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 126 (1997) 125-129.
 - [52] E. Hagebø, P. Hoff, O.C. Jonsson, E. Kugler, J.P. Omtvedt, H.L. Ravn, et al., New production systems at ISOLDE, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 70 (1992) 165-174.
 - [53] H. Ravn, R. Catherall, J. Barker, P. Drumm, A. Evensen, E. Hagebø, et al., Bunched release of gases from oxide targets, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 126 (1997) 176-181.
 - [54] D.W. Stracener, G.D. Alton, R.L. Auble, J.R. Beene, P.E. Mueller, J.C. Bilheux, Targets used in the production of radioactive ion beams at the HRIBF, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 521 (2004) 126-135.
 - [55] H. Carter, J. Kormicki, D. Stracener, J. Breitenbach, J. Blackmon, M. Smith, et al., First on-line results for As and F beams from HRIBF target/ion sources, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 126 (1997) 166-169.
 - [56] M.G. Saint Laurent, A. Pichard, G. Lhersonneau, F. De Oliveira Santos, F. Pellemoine, P. Delahaye, et al., Comparison of Expected Yields for Light Radioactive Beams at SPIRAL-1 And 2, International Symposium on Exotic Nuclei (EXON), Sochi : Russie. (2009).

- [57] M. Hass, T.Y. Hirsh, D. Berkovits, Y. Nir-El, L. Weissman, F. De Oliveira Santos, High Yield Production of ^6He and ^8Li RIB for Astrophysics and Neutrino Physics, *Proceedings of Science*. NuFact 08 (2008).
- [58] H. Schatz, F. Kaeppler, P.E. Koehler, M. Wiescher, H. Trautvetter, O-17(n, alpha)C-14 - Closure of a primordial CNO bi-cycle ?, *ApJ*. 413 (1993) 750.
- [59] M. Schmidt-Hoenow, W. Herr, Activation cross section of $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$ and $^{18}\text{O}(n,\alpha)^{15}\text{C}$ reaction for 14 MeV (D-T) neutrons, *Radiochimica Acta*. 17 (1972) 142.
- [60] MCNPX home Page, <https://mcnpx.lanl.gov/>.
- [61] R.E. Prael, HTAPE3X for use with MCNPX, Los Alamos National Laboratory Report, LA-UR-99-1992. (1999).
- [62] O. Tarasov, D. Bazin, Application of the program LISE to fusion-evaporation, *Physics of Atomic Nuclei*. 66 (2003) 1578-1581.
- [63] O.B. Tarasov, D. Bazin, Development of the program LISE: application to fusion-evaporation, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 204 (2003) 174-178.
- [64] R. Forrest, J. Kopecky, The activation system EASY-2007, *Journal of Nuclear Materials*. 386-388 (2009) 878-881.
- [65] H.W. Bertini, Low-Energy Intranuclear Cascade Calculation, *Phys. Rev.* 131 (1963) 1801.
- [66] H.W. Bertini, Intranuclear-Cascade Calculation of the Secondary Nucleon Spectra from Nucleon-Nucleus Interactions in the Energy Range 340 to 2900 MeV and Comparisons with Experiment, *Phys. Rev.* 188 (1969) 1711.
- [67] Y. Yariv, Z. Fraenkel, Intranuclear cascade calculation of high energy heavy ion collisions: Effect of interactions between cascade particles, *Phys. Rev. C*. 24 (1981) 488.
- [68] A. Boudard, J. Cugnon, S. Leray, C. Volant, Intranuclear cascade model for a comprehensive description of spallation reaction data, *Phys. Rev. C*. 66 (2002) 044615.
- [69] L. Dresner, EVAP—A FORTRAN Program for Calculating the Evaporation of Various Particles from Excited Compound Nuclei, Report No. ORNL-TM-196, Oak Ridge National Laboratory. (sans date) 1962.
- [70] A.R. Junghans, M. de Jong, H.-. Clerc, A.V. Ignatyuk, G.A. Kudyaev, K.-. Schmidt, Projectile-fragment yields as a probe for the collective enhancement in the nuclear level density, *Nuclear Physics A*. 629 (1998) 635-655.
- [71] S.G. Mashnik, A.J. Sierk, Recent Developments of the Cascade-Exciton Model of Nuclear Reactions, Los Alamos National Laboratory Report, LA-

- UR-01-5390. (sans date) Octobre 2001.
- [72] G. Lhersonneau, T. Malkiewicz, K. Kolos, M. Fadil, H. Kettunen, M. Saint-Laurent, et al., Neutron yield from carbon, light- and heavy-water thick targets irradiated by 40 MeV deuterons, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 603 (2009) 228-235.
 - [73] O. Bajeat, Production d' ^6He par neutrons sur cible de BeO (code FICNER), rapport EDMS-IN2P3, I-02612, 2010.
 - [74] M. Mirea, O. Bajeat, F. Clapier, F. Ibrahim, A. Mueller, N. Pauwels, et al., Modeling a neutron-rich nuclei source, *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*. 11 (2001) 59-78.
 - [75] Attenuation of fast neutrons: neutron moderation and diffusion 4.7.3, http://www.kayelaby.npl.co.uk/atomic_and_nuclear_physics/4_7/4_7_3.html.
 - [76] CEA Catalogue des matériels et équipements normalisés, Tome 1 : Ecrans de protection contre les rayonnements ionisant, 1987.
 - [77] P. Jardin, C. Barué, O. Bajeat, C. Canet, E. Clément, J.C. Cornell, et al., Latest developments at GANIL for stable and radioactive ion beam production, *Rev. Sci. Instrum.* 81 (2010) 02A909.
 - [78] N. Lecesne, On-line ECR ion sources: Present and future, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 266 (2008) 4338-4345.
 - [79] K. Sümmerer, B. Blank, Modified empirical parametrization of fragmentation cross sections, *Phys. Rev. C*. 61 (2000) 034607.
 - [80] R. Hodak, Communication privée, ISOLDE CERN, 2009.
 - [81] G. Lhersonneau, T. Malkiewicz, K. Kolos, M. Fadil, H. Kettunen, M. Saint-Laurent, et al., Neutron yield from carbon, light- and heavy-water thick targets irradiated by 40 MeV deuterons, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*. (2009).
 - [82] Spiral beams — GANIL WEB PRO USERS, <http://pro.ganil-spiral2.eu/users-guide/accelerators/spiral-beams>.
 - [83] O. Naviliat-Cuncic, N. Severijns, $|V_{ud}|$ from $T = 1/2$ mirror transitions and the role of atom and ion traps, *Eur. Phys. J. A*. 42 (2009) 327-331.
 - [84] O. Naviliat-Cuncic, N. Severijns, Test of the Conserved Vector Current Hypothesis in $T=1/2$ Mirror Transitions and New Determination of $|V_{ud}|$, *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009) 142302.
 - [85] J.T. Burke, P.A. Vetter, S.J. Freedman, B.K. Fujikawa, W.T. Winter, Half-life of ^{14}O , *Phys. Rev. C*. 74 (2006) 025501-5.
 - [86] M. Gaelens, J. Andrzejewski, J. Camps, P. Decrock, M. Huyse, K. Kruglov, et al., High-precision measurement of the ^{14}O half-life using a mass-

- separated radioactive beam, The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei. 11 (2001) 413-420.
- [87] D.W. Bardayan, M.S. Smith, Expressions for the $^{14}\text{O}(\alpha, p)^{17}\text{F}$ and $^{17}\text{F}(p, \gamma)^{18}\text{Ne}$ astrophysical reaction rates, Phys. Rev. C. 56 (1997) 1647.
 - [88] I. Stefan, F.D.O. Santos, M.G. Pellegriti, M. Angelique, J.C. Dalouzy, F. de Grancey, et al., Quasi-bound low energy tail of resonance, dans: L.S. Ferreira, P. Arumugan (Éd.), Proton Emitting Nuclei and Related Topics: International Conference-PROCON 2007, Lisbon (Portugal), AIP, 2007: p. 205-210.
 - [89] S. Gibouin, Contributions à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL, Thèse de l'Université de Caen, 2003.
 - [90] S. Gibouin, A.C.C. Villari, J.C. Angelique, O. Bajeat, F. Bocage, J.M. Casandjian, et al., Efficiency and production yield measurements of radioactive O, N and F for the spiral facility, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 204 (2003) 240-245.
 - [91] UCL - Université catholique de Louvain, <http://www.uclouvain.be/>.
 - [92] M. Gaelens, P. Decrock, M. Huyse, P. Van Duppen, M. Loiselet, G. Ryckewaert, Status report on the electron cyclotron resonance ion sources used for the production of radioactive ion beams at Louvain-la-Neuve, dans: Proceedings of the 6th International Conference on Ion Sources, Whistler, Canada, AIP, 1996: p. 1347-1349.
 - [93] Lawrence Berkeley National Laboratory, <http://www.lbl.gov/>.
 - [94] D. Wutte, J. Burke, B. Fujikawa, P. Vetter, S.J. Freedman, R.A. Gough, et al., Development of an ^{14}O Beam at the 88" cyclotron, Proceedings of the 1999 Particle Accelerator Conference, New York. (1999) 1952-1954.
 - [95] J.T. Burke, S.J. Freedman, B.K. Fujikawa, D. Wutte, P. Vetter, S.W. Leman, et al., A lifetime measurement of ^{14}O , dans: E. Norman, L. Schroeder, G. Wozniak, A.M. Smith (Éd.), Nuclear Physics in the 21st Century : International Nuclear Physics Conference INPC 2001, Berkeley. California (USA), AIP, 2002: p. 1039-1043.
 - [96] M. Domsby, P. Bricault, P. Schmor, M. Lane, ISAC target operation with high proton currents, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 204 (2003) 191-196.
 - [97] ISAC Yield Measurements, http://www.triumf.info/facility/research_fac/yield.php?element_name=O.
 - [98] S. Lapi, T.J. Ruth, A. Zyuzin, J.M. D'Auria, Development of an intense O-15 radioactive ion beam using low energy protons, Nuclear Instruments

- and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 204 (2003) 444-446.
- [99] G.K. Mulholland, M.R. Kilbourn, J.J. Moskwa, Direct simultaneous production of ^{15}O water and ^{13}N ammonia or ^{18}F fluoride ion by 26 MeV proton irradiation of a double chamber water target, *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*. 41 (sans date) 1193-1199.
 - [100] J. Powell, J. O'Neil, Production of ^{15}O water at low-energy proton cyclotrons, *Applied Radiation and Isotopes*. 64 (2006) 755-759.
 - [101] F.Q. Guo, J. Powell, D.W. Lee, D. Leitner, M.A. McMahan, D.M. Moltz, et al., Reexamination of the energy levels of ^{15}F by $^{14}\text{O}+\text{H}$ elastic resonance scattering, *Phys. Rev. C*. 72 (2005) 034312.
 - [102] J. Powell, R. Joosten, C.A. Donahue, R.F. Fairchild, J. Fujisawa, F.Q. Guo, et al., BEARS: radioactive ion beams at Berkeley, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 455 (2000) 452-459.
 - [103] D.W. Lee, K. Peräjärvi, J. Powell, J.P. O'Neil, D.M. Moltz, V.Z. Goldberg, et al., Low-lying resonant states in ^{16}F using a ^{15}O radioactive ion beam, *Phys. Rev. C*. 76 (2007) 024314.
 - [104] J. Powell, J.P. O'Neil, J. Cerny, Production of an accelerated oxygen-14 beam, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 204 (2003) 440-443.
 - [105] S. Lapi, Development of an Intense ^{15}O Radioactive Ion Beam Using Low Energy Protons, *Thèse de l'Université Simon Fraser*, 2003.
 - [106] M. Trinczek, S. Lapi, B. Guo, F. Ames, K. Buckley, J. D'Auria, et al., Production of intense radioactive beams at ISAC using low-energy protons, *Can. J. Phys.* 84 (2006) 325-333.
 - [107] T. Junquera, on behalf of the Spiral 2 project team, Status of the SPIRAL 2 project at GANIL, *Proceedings of SRF2009, Berlin, Germany*. (2009) 67-73.
 - [108] S.D. Cirilov, J.O. Newton, J.P. Schapira, Total cross sections for the reaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},\alpha)^{11}\text{C}$ and $^{12}\text{C}(^3\text{He}, n)^{14}\text{O}$, *Nuclear Physics*. 77 (1966) 472-476.
 - [109] R.L. Hahn, E. Ricci, Interactions of ^3He Particles with ^9Be , ^{12}C , ^{16}O , and ^{19}F , *Phys. Rev.* 146 (1966) 650.
 - [110] D.R. Osgood, J.R. Patterson, E.W. Titterton, The excitation function for the reaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ between threshold and 11.45 MeV, *Nuclear Physics*. 60 (1964) 503-508.
 - [111] J. Singh, Excitation functions for ^3He induced reactions with ^{12}C , *Nuclear Physics A*. 155 (1970) 443-452.
 - [112] TENDL-2009 - TALYS, <http://www.talys.eu/tendl-2009/>.
 - [113] A.J. Koning, D. Rochman, TENDL-2009: TALYS-based Evaluated Nuclear

- Data Library covariance data, To Be Published. JEFF-DOC 1310 (2009).
- [114] P. Dyer, D. Bodansky, A.G. Seamster, E.B. Norman, D.R. Maxson, Cross sections relevant to gamma-ray astronomy: Proton induced reactions, *Phys. Rev. C.* 23 (1981) 1865.
 - [115] Z. Kovács, B. Scholten, F. Tárkányi, H.H. Coenen, S.M. Qaim, Cross section measurements using gas and solid targets for production of the positron-emitting radionuclide O-14, *Radiochimica Acta.* 91 (2005) 185-189.
 - [116] S.W. Kitwanga, P. Leleux, P. Lipnik, J. Vanhorenbeeck, Production of ^{14}O , ^{15}O , ^{18}F , and ^{19}Ne radioactive nuclei from (p,n) reactions up to 30 MeV, *Phys. Rev. C.* 42 (1990) 748.
 - [117] James Ziegler - SRIM & TRIM, <http://www.srim.org/>.
 - [118] T. Nozaki, M. Iwamoto, Yield of ^{14}O for the reaction $^{14}\text{N}(p, n)^{14}\text{O}$, $^{12}\text{C}(^3\text{He}, n)^{14}\text{O}$ and $^{12}\text{C}(\alpha, 2n)^{14}\text{O}$, *Radiochimica Acta.* 29 (1981) 57-59.
 - [119] EURISOL "user group" meeting, http://www.df.unipi.it/~angela/EURISOL_UG_def.html.
 - [120] SPIRAL 2 WORKSHOP 2007 - RNB session, <http://spiral2ws.ganil.fr/2007/week/presentations/Wednesday/RNB%20Facilities%20Session%202/>.
 - [121] NPI, Rez, <http://mx.ujf.cas.cz/>.
 - [122] Goodfellow, <http://www.goodfellow.com/>.
 - [123] National Nuclear Data Center, <http://www.nndc.bnl.gov/>.
 - [124] Extrema Home Page, <http://exsitewebware.com/extrema/>.
 - [125] O. Tarasov, D. Bazin, LISE++: Radioactive beam production with in-flight separators, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* 266 (2008) 4657-4664.
 - [126] U. Littmark, J.F. Ziegler, Handbook of range, distributions for energetic ions in all elements, Pergamon Press, 1980.
 - [127] D.J. Frantsvog, A.R. Kunselman, R.L. Wilson, C.S. Zaidins, C. Détraz, Reactions induced by ^3He and ^4He ions on natural Mg, Al, and Si, *Phys. Rev. C.* 25 (1982) 770.
 - [128] LISE++ : a simulation of fragment separators - Last modifications, <http://groups.nscl.msu.edu/lise/changes.html>.
 - [129] A. Fenyvesi, F. Tárkányi, S.-. Heselius, Excitation functions of nuclear reactions induced by ^3He -particles on cobalt, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* 222 (2004) 355-363.
 - [130] Y. Nagame, Y. Nakamura, M. Takahashi, K. Sueki, H. Nakahara, Pre-equilibrium process in ^3He -induced reactions on ^{59}Co , ^{109}Ag , ^{181}Ta and ^{209}Bi , *Nuclear Physics A.* 486 (1988) 77-90.

- [131] F. Szelecsényi, Z. Kovács, K. Suzuki, K. Okada, T. Fukumura, K. Mukai, Formation of ^{60}Cu and ^{61}Cu via $\text{Co} + ^3\text{He}$ reactions up to 70 MeV: production possibility of ^{60}Cu for PET studies, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 222 (2004) 364-370.
- [132] R. Michel, M. Galas, ^3He -induced reactions on cobalt, Nuclear Physics A. 404 (1983) 77-92.
- [133] Y. Homma, Y. Murakami, Production of ^{61}Cu by alpha and ^3He bombardment on cobalt target, Bull.of the Chemical Soc.of Japan. 50 (1977) 1251.
- [134] S. Kondratyev, Y. Lobach, V. Sklyarenko, Nuclear reaction cross-sections for 93 MeV ^3He -ions on ^{59}Co , Ukrainskii Fizichnii Zhurnal. 43 (1998) 5.
- [135] D. Darquennes, T. Delbar, P. Lipnik, A high temperature graphite target for the production of ^{13}N , Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 47 (1990) 311-319.
- [136] T. Delbar, W. Galster, P. Leleux, P. Lipnik, M. Loiselet, G. Ryckewaert, A target connected to an ECR source for the production of ^{13}N ions, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 84 (1994) 512-514.
- [137] MICROFRAL - Traitement des métaux, <http://www.microfral.fr/>.
- [138] CENBG, <http://www.cenbg.in2p3.fr/>.
- [139] L. Serani, Rapport de synthèse sur les tests thermiques de cibles pour la fusion/évaporation au CENBG, rapport EDMS-IN2P3, I-019110, 2010.
- [140] Raytek - Mesure de température sans contact par infrarouge, <http://www.raytek.fr/Raytek/fr-r0/ProductsAndAccessories/InfraredPointSensors/MarathonSeries/MarathonMM/Default.htm>.
- [141] COMSOL : Multiphysics Modeling and Simulation, V 3.5, <http://www.comsol.com/>.
- [142] Institut de Physique Nucléaire d'Orsay, <http://ipnweb.in2p3.fr/>.
- [143] SPIRAL 2 WORKSHOP 2009 - RNB session, <http://spiral2ws.ganil.fr/2009/week/presentations/rnb/>.
- [144] J.L. Black, H.M. Kuan, W. Gruhle, M. Suffert, G.L. Latshaw, Reactions $^{12}\text{C}(\alpha, n)^{15}\text{O}$ and $^{12}\text{C}(\alpha, p)^{15}\text{N}$, Nuclear Physics A. 115 (1968) 683-696.
- [145] M. Huyse, Ionization in a hot cavity, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 215 (1983) 1-5.
- [146] R. Kirchner, On the thermoionization in hot cavities, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers,

- Detectors and Associated Equipment. 292 (1990) 203-208.
- [147] R. Kirchner, Ion sources for radioactive beams and related problems, dans: Proceedings of the 6th International Conference on Ion Sources, Whistler, Canada, AIP, 1996: p. 928-933.
 - [148] R. Kirchner, Progress in ion source development for on-line separators, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 186 (1981) 275-293.
 - [149] R. Kirchner, A. Piotrowski, Thermal ionization in a hot cavity, Nuclear Instruments and Methods. 153 (1978) 291-292.
 - [150] V. Afanas'ev, V. Obukhov, V. Raiko, Thermoionization efficiency in the ion source cavity, Nuclear Instruments and Methods. 145 (1977) 533-536.
 - [151] R. Delhuille, A. Miffre, E. Lavallette, M. Buchner, C. Rizzo, G. Trenec, et al., Optimization of a Langmuir--Taylor detector for lithium, Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 2249-2258.
 - [152] A. Latuszynski, V. Raiko, Studies of the ion source with surface-volume ionization, Nuclear Instruments and Methods. 125 (1975) 61-66.
 - [153] E. Pilzer, G. Engler, A new ion source for fission-yield measurements of rare-earth isotopes, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 26 (1987) 218-222.
 - [154] H. Kawano, S. Matsui, N. Serizawa, Thermal positive-ion source developed for molecular beam detection, dans: Proceedings of the 6th International Conference on Ion Sources, Whistler, Canada, AIP, 1996: p. 1193-1195.
 - [155] H. Kawano, K. Ogasawara, H. Kobayashi, A. Tanaka, T. Takahashi, Y. Tagashira, Selection of the residual gas pressure suitable for operating a positive ion source of thermal ionization type, dans: Proceedings of the 7th International Conference on Ion Sources, Shirahama, Wakayama (Japan), AIP, 1998: p. 1182-1184.
 - [156] H. Kawano, T. Takahashi, Y. Tagashira, H. Mine, M. Moriyama, Work function of refractory metals and its dependence upon working conditions, Applied Surface Science. 146 (1999) 105-108.
 - [157] H. Kawano, T. Kenpo, Thermal positive ion production from KCl impinging upon Re: Comparison between theory and experiment, J. Chem. Phys. 81 (1984) 6310-6312.
 - [158] T. Eggert, Phys. Z. 20 (1919) 533.
 - [159] I. Langmuir, K.H. Kingdon, Thermionic Effects Caused by Vapours of Alkali Metals, Proc. R. Soc. Lond. A. 107 (1925) 61-79.
 - [160] C. Eléon, P. Jardin, G. Gaubert, M. Saint-Laurent, J. Alcántara-Núñez, R. Alvès Condé, et al., Development of a surface ionization source for the production of radioactive alkali ion beams in SPIRAL, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 266 (2008) 4362-4367.

- [161] I. Amarel, R. Bernas, J. Chaumont, R. Foucher, J. Jastrezbski, A. Johnson, et al., *Ark. Fys.* 36 (1967) 77.
- [162] T. Bjørnstad, E. Hagebø, P. Hoff, O. Jonsson, E. Kugler, H. Ravn, et al., Recent development of high-temperature metal targets for ISOLDE, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* 26 (1987) 174-182.
- [163] U. Köster, ISOLDE target and ion source chemistry, *Radiochimica Acta.* 89 (2001) 749.
- [164] Phan Viet Cuong, Development of new surface ion-source and ion-guide in ALTO project, Thèse de l'université Paris XI Orsay, 2009.
- [165] Petersburg Nuclear Physics Institute, <http://www.pnpi.spb.ru/index.html.en>.
- [166] A. Andrichetto, O. Bajeat, A.E. Barzakh, S. Essabaa, D.V. Fedorov, A.M. Ionan, et al., On-line production of Rb and Cs isotopes from uranium carbide targets, *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei.* 23 (2005) 257-264.
- [167] V.N. Panteleev, A.E. Barzakh, D.V. Fedorov, A.M. Ionan, K.A. Mezilev, F.V. Moroz, et al., Combined target-ion source unit for production of rare nuclides, *Rev. Sci. Instrum.* 77 (2006) 03A705-4.
- [168] V.N. Panteleev, A.E. Barzakh, D.V. Fedorov, A.M. Ionan, V.S. Ivanov, F.V. Moroz, et al., Enhancement of ionization efficiency of surface, electron bombardment and laser ion sources by axial magnetic field application, *Rev. Sci. Instrum.* 75 (2004) 1585-1587.
- [169] V.N. Panteleev, A.E. Barzakh, D.V. Fedorov, F.V. Moroz, S.Y. Orlov, M.D. Seliverstov, et al., High temperature ion sources with ion confinement, *Rev. Sci. Instrum.* 73 (2002) 738.
- [170] Japan Atomic Energy Agency, <http://www.jaea.go.jp/english/index.shtml>.
- [171] A. Osa, S. Ichikawa, M. Matsuda, T.K. Sato, S. Jeong, Ion source development for the on-line isotope separator at JAEA, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* 266 (2008) 4394-4397.
- [172] A. Osa, M. Matsuda, T.K. Sato, S. Ichikawa, Release and efficiencies of radioactive ion beams from the JAEA-ISOL target/ion source systems, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* 266 (2008) 4373-4377.
- [173] G. Alton, M. Johnson, G. Mills, A simple positive/negative surface ionization source, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 328 (1993) 154-159.
- [174] G.D. Alton, R.F. Welton, B. Cui, S.N. Murray, G.D. Mills, A new concept

- positive (negative) surface ionization source equipped with a high porosity ionizer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 142 (1998) 578-591.
- [175] M. Dombsky, R. Baartman, J. Doornbos, T. Hodges, K. Jayamanna, R. Keitel, et al., An ion source test stand for the ISAC facility at TRIUMF, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 126 (1997) 50-54.
 - [176] M. Dombsky, R. Baartman, P. Bricault, J. Doornbos, K. Jayamanna, T. Kuo, et al., Evaluation of a prototype Isotope Separator Accelerator surface ionization source, dans: Proceedings of the 7th International Conference on Ion Sources, Shirahama, Wakayama (Japan), AIP, 1998: p. 1170-1172.
 - [177] M. Dombsky, D. Bishop, P. Bricault, D. Dale, A. Hurst, K. Jayamanna, et al., Commissioning and initial operation of a radioactive beam ion source at ISAC, dans: The 8th International Conference on Ion Sources, Kyoto (Japan), AIP, 2000: p. 978-980.
 - [178] H. Kawano, H. Mine, M. Moriyama, M. Tanigawa, Y. Zhu, Selection of the substrate metal best for thermal positive ionization, dans: The 8th International Conference on Ion Sources, Kyoto (Japan), AIP, 2000: p. 856-858.
 - [179] F. Hosni, Faisceaux exotiques par méthode ISOL Développements pour l'ionisation par laser et l'ionisation de surface, Thèse de l'Université d'Orsay, 2004.
 - [180] R. Kirchner, On the release and ionization efficiency of catcher-ion-source systems in isotope separation on-line, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 70 (1992) 186-199.
 - [181] N. Lecesne, A. Villari, J. Angelique, P. Bertrand, B. Blank, F. Clapier, et al., A new method for measuring the absolute efficiency of isotope separation on-line systems, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 126 (1997) 141-145.
 - [182] A. Pichard, J. Alcántara-Núñez, R. Alvès-Condé, M. Dubois, R. Frigot, P. Jardin, et al., Method for efficiency and time response measurement on diverse target ion sources with stable alkali, Proceedings of EPAC08, Genoa, Italy. (2008) 436-438.
 - [183] G. Darius, Etude et mise en oeuvre d'un dispositif pour la mesure du paramètre de corrélation angulaire dans la désintégration du noyau Hélium6, Page 66 de la thèse, Thèse de l'Université de Caen, 2004.
 - [184] M. Santana-Leitner, A Monte Carlo code to optimize the production of Radioactive Ions Beams by the ISOL technique, Thèse de l'Université

- Technique de Catalogne, 2005.
- [185] A. Méry, P. Jardin, J. Alcántara-Núñez, M.G. Saint-Laurent, O. Bajeat, P. Delahaye, et al., Direct $1+ \rightarrow N+$ conversion of stable alkali ions using an electron cyclotron resonance ion source, *Rev. Sci. Instrum.* 81 (2010) 02A904.
 - [186] C. Eleon, O. Tuske, G. Gaubert, J.Y. Pacquet, M. Dubois, M.G.S. Laurent, et al., Direct $1+$ to $n+$ method for production of radioactive alkaline ions, *Rev. Sci. Instrum.* 77 (2006) 03A704-3.
 - [187] HeatWave Labs, <http://www.cathode.com/>.
 - [188] Carbone Lorraine, <http://www.carbonelorraine.com/>.
 - [189] Micro-pyrometer PU11 Keller HCW, <http://www.keller-msr.de/>.
 - [190] R.W. Powell, F.H. Schofield, The thermal and electrical conductivities of carbon and graphite to high temperatures, *Proceedings of the Physical Society.* 51 (1939) 153-172.
 - [191] J. Frenkel, Theorie der Adsorption und verwandter Erscheinungen, *Zeitschrift Für Physik A Hadrons and Nuclei.* 26 (1924) 117-138.
 - [192] A. Baturin, K. Nikolski, A. Knyazev, R. Tchesov, E. Sheshin, Doping of graphite by an alkaline-earth metal to reduce the work function, *Technical Physics.* 49 (2004) 342-344.
 - [193] Z. Hu, N. Wu, A. Ignatiev, Cs induced work function changes on the graphite (0001) surface, *Surface Science.* 177 (1986) L956-L962.
 - [194] G. Lhersonneau, P. Dendooven, G. Canchel, J. Huikari, P. Jardin, A. Jokinen, et al., Production of neutron-rich isotopes in fission of uranium induced by neutrons of 20 MeV average energy, *The European Physical Journal A.* 9 (2000) 12.
 - [195] N. Lecesne, Description de la boîte ECS, rapport EDMS-IN2P3, I-010705, 2008.
 - [196] S. Essabaa, Rapport d'étape Four V5.3, rapport EDMS-IN2P3, I, 2010.
 - [197] F. Launay, Etude de l'isolation thermique du four cible-source pour Spiral2., rapport EDMS-IN2P3, I-021052, 2010.
 - [198] Communication privée avec N. Lecesne, (2009).
 - [199] F. Ames, T. Brumm, K. Jäger, H. Kluge, B. Suri, H. Rimke, et al., A high-Temperature Laser Ion Source for Trace Analysis and Other Applications, *Applied Physics Section B : Photo-Physics and Laser Chemistry.* 51 (1990) 200-206.
 - [200] L.P. Filippow, Research of thermophysical properties at the moscow state university, *International Journal of Heat and Mass Transfer.* 16 (1973) 865-885.
 - [201] GrafTech International, <http://www.graftech.com/HOME.aspx>.
 - [202] R. Geller, Electron cyclotron resonance ion sources and ECR plasmas,

- Institute of Physics Pub., 1996.
- [203] B. Wolf, Handbook of ion sources, CRC Press, 1995.
 - [204] M. Dubois, J. Alcántara-Núñez, R. Alvès-Condé, C. Barué, C. Canet, M. Dupuis, et al., Permanent Magnets Under Irradiation and Radioactive Alkali Ion Beam Development for SPIRAL I, Proceedings of ECRIS08, Chicago, IL USA. (2008) 102-105.
 - [205] M. Tavlet, A. Fontaine, H. Schönbacher, H. Schönbacher, CERN. Geneva. Technical Inspection and Safety Commission, Compilation of radiation damage test data, pt.2, 2 éd., Geneva, CERN, 1998.
 - [206] E.D. Donets, Historical review of electron beam ion sources, Rev. Sci. Instrum. 69 (1998) 614.
 - [207] E.D. Donets, V.I. Ilyushchenko, V.A. Alpert, Jinrp7- 4124. (1968).
 - [208] R. Becker, Electron beam ion sources and traps, Rev. Sci. Instrum. 71 (2000) 816.
 - [209] P. Jardin, C. Barue, C. Canet, M. Dupuis, J.L. Flambard, G. Gaubert, et al., Mono 1000: A simple and efficient 2.45 GHz electron cyclotron resonance ion source using a new magnetic structure concept, Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 789.
 - [210] O. Bajeat, Tests du 1er prototype de tuyau souple refroidi pour les amenées de courant de la boîte ECS Spiral2, rapport EDMS-IN2P3, I-017985, 2009.
 - [211] M. Moscatello, Technical Report of the radioactive beam section, rapport EDMS-IN2P3, I-011805, 2008.
 - [212] O. Bajeat, CR réunion four du 4 juin 2008, rapport EDMS-IN2P3, I-013830, 2008.
 - [213] O. Bajeat, CR de la réunion du 18 février 2008 sur le four, rapport EDMS-IN2P3, I-012570, 2008.
 - [214] P. Jardin, W. Farabolini, G. Gaubert, J.Y. Pacquet, J. Cornell, F. Durantel, et al., Atom-to-ion transformation time in singly charged ECRISs, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 225 (2004) 374-382.
 - [215] S. Lukic, F. Gevaert, A. Kelic, M. Ricciardi, K. Schmidt, O. Yordanov, Systematic comparison of ISOLDE-SC yields with calculated in-target production rates, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 565 (2006) 784-800.
 - [216] B. Roussière, F. Ibrahim, J. Sauvage, O. Bajeat, N. Barré, F. Clapier, et al., Release properties of UCx and molten U targets, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 194 (2002) 151-163.
 - [217] B. Roussière, O. Bajeat, N. Barré, C. Bourgeois, F. Clapier, E. Cottureau, et

- al., Release of Kr, Ag, Sn, I and Xe from UCx targets, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 246 (2006) 288-296.
- [218] V. Panteleev, O. Alyakrinskiy, M. Barbui, A. Barzakh, M. Dubois, C. Eleon, et al., Studies of uranium carbide targets of a high density, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 266 (2008) 4247-4251.
- [219] Communication privée avec M. Santana-Leitner, (2010).
- [220] Argonne Physics Division, <http://www.phy.anl.gov/>.
- [221] Lawrence Livermore National Laboratory, <https://www.llnl.gov/>.
- [222] INFN - Istituto Nazionale di Fisica Nucleare, <http://www.infn.it/indexen.php>.
- [223] American Elements - France, <http://www.americanelements.com/france.htm>.
- [224] HSC Chemistry, Software for Process simulation, Reactions Equations, Heat and Material Balances, Heat Loss Calculator, Equilibrium Calculations, Electrochemical Cell Equilibriums, Eh-pH Diagrams – Pourbaix diagram, Tpp Diagrams – Stability diagrams, Mineralogy Iterations, <http://www.hsc-chemistry.net/index.html>.
- [225] Poco Graphite, <http://www.poco.com/>.
- [226] Grafoil Gasket Material, <http://www.gasketing.net/grafoil.htm>.
- [227] P.S. Andrieu, P. Müller, Les surfaces solides : concepts et méthodes, 2005.
- [228] A. Pichard, Choix des matériaux pour la source à ionisation de surface, rapport EDMS-IN2P3, I-022568, 2010.
- [229] W.F. Gale, C.J. Smithells, T.C. Totemeier, Smithells metals reference book, Butterworth-Heinemann, 2004.
- [230] D.R. Lide, CRC handbook of chemistry and physics: a ready-reference book of chemical and physical data, CRC Press, 2004.
- [231] F. Cardarelli, Materials Handbook: A concise desktop reference, Springer Verlag Ny, 2007.
- [232] B.J. Hopkins, K.R. Pender, The work function of a (110) oriented tungsten single-crystal face, Br. J. Appl. Phys. 17 (1966) 281-282.

Glossaire

Chapitre 1

$\sigma(E)$: fonction d'excitation d'une réaction.
 $\Phi(E, \theta)$: distribution en énergie et en angle d'un flux de neutrons.
 μ : coefficient d'atténuation des neutrons dans la matière.
 T_{prod} : taux de production en cible épaisse.
 I_{γ} : rapport d'embranchement d'un rayonnement γ
 Q : seuil de réaction.
 t_{irr} : durée de l'irradiation de l'échantillon.
 t_{dep} : durée du déplacement.
 t_{acq} : durée de l'acquisition de l'échantillon.
 λ : constante de désintégration radioactive.
 \overline{TM} : facteur d'acceptation de la chaîne d'acquisition dû au temps mort.
 ϵ_{γ} : efficacité du détecteur γ à l'énergie correspondante du rayonnement.
 f : fréquence du générateur d'impulsions.
 N_f : nombre d'atomes dans les feuilles irradiées.
 m_f : masse des feuilles irradiées.
 M : masse molaire.
 N_a : nombre d'Avogadro.
 ρ : masse volumique.
 S : surface émissive.
 ϵ : émissivité
 T : température de la surface
 σ : constante de Stefan-Boltzmann.
 $F_{a \rightarrow b}$: facteur de forme de la zone a vers la zone b.

Chapitre 2

I : potentiel de première ionisation.
 n_i : concentration d'ions dans un plasma.
 n_e : concentration d'électrons dans un plasma.
 n_0 : concentration d'atomes (neutres) dans un plasma.
 g_i : poids statistiques de l'ion.
 g_0 : poids statistiques de l'atome, (pour les alcalins, $g_0/g_i = 2$).
 Φ : travail de sortie de l'électron de la paroi.
 m_e : masse de l'électron : $5,489 \times 10^{-4}$ uma.
 k_B : constante de Boltzmann : $1,380 \times 10^{-23}$ J.K⁻¹.
 T : température.
 h : constante de Planck : $6,626068 \times 10^{-34}$ m².kg.s⁻¹.
 r : ratio de la densité des ions sur celle des atomes.
 P_+ : probabilité d'ionisation par contact.
 Φ_p : potentiel du plasma créé au centre d'une source à cavité chaude.

N_{TE} : facteur d'amplification d'une source à cavité chaude.

η : efficacité d'ionisation dans le volume d'une source à cavité chaude.

χ : nombre moyen de collisions des atomes sur les parois d'une source à cavité chaude.

ω : probabilité qu'un ion produit soit extrait sans être neutralisé.

R : résistance électrique.

ρ : résistivité électrique.

n_1 : nombre d'atomes dans la cavité.

n_2 : nombre d'atomes dans le tube ioniseur.

n_3 : nombre d'atomes dans l'environnement (four diaphragme).

λ_{ij} : « vitesse » de passage de la zone i vers la zone j.

λ_p : « vitesse » de perte dans la zone 3.

λ_i : « vitesse » d'ionisation dans le tube ioniseur.

λ_0 : « vitesse » de neutralisation dans le tube ioniseur.

λ_{as} : « vitesse » de sortie du tube ioniseur sous forme atomique.

λ_{is} : « vitesse » de sortie du tube ioniseur sous forme ionique.

τ_0 : terme source de la cavité.

N_0 : nombre d'atomes implantés sur la feuille.

λ_{rel} : vitesse de relâchement des atomes par la feuille.

α et β : paramètres partageant le terme source de la cavité et de son environnement de telle sorte que $\alpha + \beta = 1$ et $0 < \beta < \alpha$.

τ_v : temps de vol entre deux contacts.

τ_r : temps de résidence sur une paroi.

l_m : libre parcours moyen.

m : masse de l'atome.

τ_c : temps de collage sur une paroi.

E_D : enthalpie de désorption.

Chapitre 3

n_i : nombre d'ions dans la source.

N_{a0} : nombre d'atomes injecté dans la source à $t = 0$.

λ_{ion} : « vitesse » d'ionisation dans la source ECR.

λ_{eff} : « vitesse » d'effusion hors de la source ECR.

ϵ_i : efficacité d'ionisation de la source ECR.

Chapitre 4

$R(t)$: fonction de relâchement.

λ : constante de désintégration radioactive.

t_{vol} : temps de vol total dans la cible calculé avec RIBO pour l'hélium à 300 K.

m_{alcalin} : masse de l'alcalin.

m_{He} : masse de l'hélium.

T : température de la cible.

χ : nombre de collisions dans la cible calculé avec RIBO.

$\tau_{\text{résidence}}$: le temps de résidence pour un alcalin sur une surface en graphite à la température T .



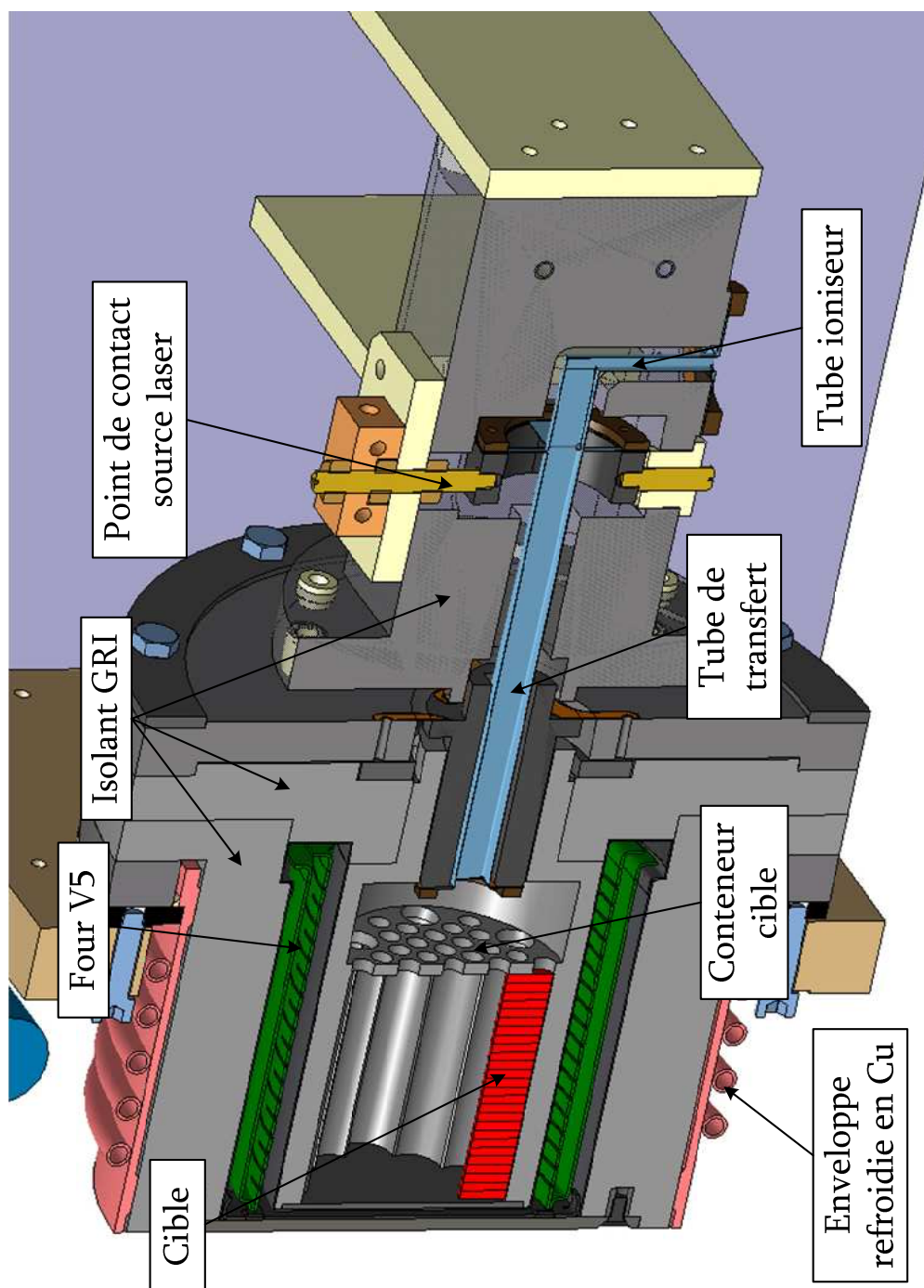


Fig. 77 _ Vue en coupe de la SIS couplée au four V5 [196,197] de la cible UCx. L'isolant GRI est une couverture rigide faite de fibres de carbone.



Cette thèse concerne l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL pour le projet SPIRAL 2.

La production de faisceaux légers est tout d'abord considérée. Les taux de production potentiels de deux faisceaux sont évalués : la production de ^{15}C (riche en neutrons) dans une cible d'oxyde est estimée à l'aide de simulations (MCNPx, EAF-07) et de données expérimentales ; le taux de production d' ^{14}O (déficient en neutrons) est estimé par une nouvelle mesure de la fonction d'excitation de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$. Une première conception de la cible de production basée sur des simulations thermiques est présentée. Cette étude apporte les réponses nécessaires à la conception détaillée d'un système qui permettrait d'atteindre un taux de production 140 fois plus élevé qu'avec SPIRAL 1.

La production des faisceaux d'ions radioactifs issus de fissions dans une cible d'UCx est aussi étudiée, et plus particulièrement les processus d'effusion et d'ionisation.

Une étude de principe et une campagne de tests hors ligne ont permis d'acquérir des connaissances indispensables à la conception de la source à ionisation de surface de SPIRAL 2. Un premier prototype de cette source dédiée à la production d'éléments alcalins et alcalino-terreux a été réalisé et une calibration thermique a été effectuée.

Les efficacités d'ionisation et de temps de réponse sur l'ensemble cible source ECR ont été mesurées à différentes températures de la cible et pour différents gaz nobles.

Ces mesures ont permis d'estimer l'impact des processus d'effusion et d'ionisation sur l'efficacité de production de différents isotopes d'alcalins et de gaz nobles en fonction de leur durée de vie.

Radioactive ion beam development for the SPIRAL 2 project.

This thesis focuses on the study of radioactive ion beam production by the ISOL method for the SPIRAL 2 project.

The production of light ion beams is studied and the potential in-target yields of two beams are appraised. The neutron-rich ^{15}C yield in an oxide target is estimated with simulations (MCNPx, EAF-07) and experimental data bases; the neutron-deficient ^{14}O yield is estimated thanks to a new measurement of the $^{12}\text{C}(^3\text{He},n)^{14}\text{O}$ reaction excitation function.

Based on thermal simulations, a first design of the production target is presented. This thermal study gives the necessary answers for the detailed design of the system able to reach a production yield 140 times higher than with SPIRAL 1.

The production of radioactive ion beams coming from fissions in the UCx target is also studied and more particularly effusion and ionisation processes.

A global study and an off-line tests campaign allow essential knowledge to the design of the surface ionisation source for SPIRAL 2 to be acquired. A first prototype of this ion source dedicated to alkali and alkaline-earth element production has been built and a thermal calibration performed.

Ionisation efficiency and time response of the target-ion source system have been measured at different target temperatures and for different noble gases.

These measurements allow evaluation of the impact of effusion and ionisation processes on the production efficiency of different alkali and noble gases isotopes as a function of their half-life.

Mots-clés : Faisceaux d'ions radioactifs – Physique nucléaire--Instruments – Ionisation – Matériaux--Propriétés thermiques – Sources d'ions – Cibles (physique nucléaire) – Sections efficaces (physique nucléaire) – Plasmas (gaz ionisés)--Confinement

Discipline : Génie des procédés

Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (CEA/DSM – CNRS/IN2P3)

Bd Henri Becquerel, BP 55027, 14076 CAEN Cedex 05, FRANCE